

# ニアフィールド核種移行に関する 概括的感度解析手法の高度化

(動力炉・核燃料開発事業団 研究委託内容報告書)

技術資料		
開示区分	レポート No.	受領日
⊗	J1281 96-004	1996. 12.13.
この資料は技術管理室保存資料です 閲覧には技術資料閲覧票が必要です 動力炉・核燃料開発事業団 技術協力部技術管理室		

1996年3月

日揮株式会社

この資料は、動燃事業団の開発事業を進めるため、特に限られた関係者だけに開示するものです。ついては、複製、転機、引用等を行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理して下さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないよう特に注意して下さい。

本資料についての問い合わせは下記に願います。

〒107 東京都港区赤坂 1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団

技術協力部 技術管理室

## ニアフィールド核種移行に関する概括的感度解析手法の高度化

高瀬 博康\*、Stephen Einchcombe\*\*、Peter Grindrod\*\*

### 要 旨

高レベル放射性廃棄物地層処分システムに対する性能評価においては、その予測的な性質及び関連する時間及び空間的なスケールのために、種々の不確実性が介在することは不可避である。これまでに開発されてきた不確実性解析あるいは感度解析の手法は、しかしながら、多数存在する不確実性因子のうちパラメータの不確実性についてのみ適用可能なものであった。本研究の主たる目的は、パラメータ以外の不確実性や変動可能性、特にシナリオや概念モデルについても適用可能な新たな手法を開発することにある。

平成5年度及び6年度には、以下の二つの主要な概念を組み合わせたものである「動的解析手法」を開発した。

- ・不定表現となる広義拡散係数により全ての可能な核種移行挙動を表現することが可能な広義拡散方程式
- ・外部事象が人工バリア内及びその周囲における核種移行に及ぼす影響のみを表現する「シャドウモデル」

また、これに加えて汎用 DAE (Differential Algebraic Equations) ソーバーである SPADE 上で次元の広義拡散方程式を定式化し、これを用いて多数の例題に対する解析を実施した。これらの例題は、3メンバーから成る単一崩壊系列の放射性核種の人工バリアを通じた移行問題であり、以下のような諸プロセスを考慮したものである。

- ・ガラス浸出
- ・オーバーパック-ガラス相互作用
- ・安定相及び準安定相の速度論的な溶解・沈澱

- ・結晶化
- ・吸着
- ・コロイド生成、解離、及び移動
- ・外部事象の影響による溶解度の変化
- ・外部事象の影響によるゆるみ域内地下水流量の変化

これらの例題への適用を通じて、動的解析の手法が既存の解析手法に比してより広いクラスの不確実性及び変動可能性に適用可能なものであることがわかった。

本平成7年度には、以上の成果を受けて次のような項目を実施した。

1. SPADE上の1次元プロトタイプモデルを拡張し、複数崩壊系列の問題を扱えるようにすること
2. 従来の不確実性解析手法に対する文献調査を行い、これらの限界及び代替的な手法を用いた打開策を明らかにすること
3. 動的解析に適した体系的な感度解析の手法を明確化すること

各項目について得られた主要な成果は次の通りである。

1. prespf. file を用いてSPADEの問題を設定するという方法を採用することにより、任意メンバーの複数崩壊系列と複数の移行形態さらにはこれらの間の瞬時平衡あるいは速度論的な遷移を考慮した現象等の複雑な問題を効率的かつ体系的に設定することが可能となった。

2. 従来の不確実性解析手法の主な問題点は、

- i) 設定されたケースの「尤らしさ」に対する主観的な判断に確率論を適用することの不適切さ（これは「リスク希釈」と呼ばれる効果をもたらす）
- ii) 異なるシナリオや概念モデルを、数学的な枠組みのないまま離散的な対象として取り扱うことにある。

これらに対しては、上記の動的解析の手法を確率論に代わるものとしてファジー理論と組み合わせることによって解決していく見込みがある。

3.従来の感度解析手法は、動的解析を先導しあるいはまた結果を解釈するという目標を必ずしも常に満足し得るものではない。特に、この問題点はモデルの応答が非線形あるいは非単調である場合に顕著なものとなる。このような場合には、本研究で新たに開発したSVD (Singular Value Decomposition) によるパターン認識の手法を用いて影響の高いケース群の共通的な特徴を客観的に明らかにしていくことが有効である。

今後の研究課題としては、以下の二つの方向性が重要である。

- ・ニアフィールド母岩の不均質性と時間的な変遷による影響を採り入れた多次元の核種移行解析手法の開発
- ・シナリオ、概念モデル及びパラメータの変動可能性と不確実性とを包含するシャドウモデル空間についての網羅的な不確実性解析の実施

---

本報告書は、日揮株式会社が動力炉・核燃料事業団の委託により実施した研究の成果である。

契約番号：070D0293

事業団担当部課室及び担当者：東海事業所 環境技術開発部 地層処分開発室 牧野仁史

\* 日揮株式会社

\*\* QuantiSci 社

## R&amp;D of Methodology for Nearfield Active Phenomena (Ph.3)

Hiroyasu Takase\*, Stephen Einchcomb\*\*, Peter Grindrod\*\*

## Abstract

Performance assessment of geological disposal system for high-level radioactive waste is subject to numerous sources of uncertainty due to its predictive nature and the spatio-temporal scale of concern. The uncertainty and sensitivity analysis methodologies developed to date, however, are applicable only to 'parameter variability and uncertainties'. The main theme of this study is to develop and test a new methodology which is capable of handling other types of variability and uncertainty, in particular those of scenarios and conceptual models.

In the financial year of 1993 and 1994, we developed an approach called 'scenario exploration', which combines the following two key concepts;

- generalized diffusion equation and indeterminate expression of generalized diffusion coefficient which can accommodate all the possible migration behaviour,
- shadow models to mimic possible effects of a spectrum of external forces onto nuclide migration in and around the engineered barrier system (EBS).

Also a prototype one-dimensional model to materialize this approach was developed on a generic DAE (Differential and Algebraic Equations) solver SPADE and tested against a number of example problems. These test cases are concerning nuclide (single decay chain with three members) migration through the EBS taking into account processes such as;

- corrosion of glass,
- overpack-glass interaction,
- kinetic precipitation/dissolution of stable and/or metastable solids,

- crystallization,
- sorption,
- colloid generation/dissociation and its transport,
- changes of solubility due to internal or external events,
- changes of groundwater fluxes due to internal or external events.

Results of these test cases indicated applicability of the new methodology to a range of variability and uncertainty much wider than the existing ones.

In the financial year 1995, we conducted the following three major tasks.

1. Extension of the prototype one dimensional model formulated on SPADE to include multiple decay chain problems.
2. Literature survey of existing uncertainty analysis techniques to clarify their limitations and possible ways forward using alternative ideas.
3. Development of a systematic sensitivity analysis methodology suitable to 'scenario exploration' approach.

Major results of these tasks are;

1. Use of prespf. file to generate SPADE spf.files guarantees an efficient and systematic way to formulate complex problems including migration of multiple decay chains of arbitrary length with multiple chemical species inter-related via instantaneous or kinetic transitions.
2. Major limitation of the existing uncertainty analysis methodologies are in;
  - i) applying the probability theory to subjective judgement of 'plausibleness', which could lead to 'risk dilution' in the assessment results,
  - ii) treating scenarios and conceptual alternatives as discrete objects without a rigorous mathematical basis.

Combination of the fuzzy set theory and newly developed scenario exploration methodology should be able to resolve these problems.

3. Conventional sensitivity analysis techniques are not always capable of guiding scenario

exploration calculations, in particular for the problems where response of the model is neither linear nor monotonic. Instead, a newly developed technique based on SVD (Singular Value Decomposition) method provides an efficient way to recognize key features of the critical cases.

For the future works, following two major directions were identified;

- enhanced treatment of heterogeneous and evolutionary features of the near field host rock and their effects on nuclide migration in higher spatial dimensions,
- uncertainty analysis throughout the shadow functional space which accommodates the variability originated from scenarios, conceptual models and parameters.

---

Work performed by JGC corporation under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation  
PNC Liaison: Geological Isolation Technology Section, Waste Technology Department Division, Tokai Works

Hitoshi Makino

\* JGC Corporation

\*\* QuantiSci



# 目 次

はじめに .....	1
1. 人工バリア中核種移行挙動 .....	4
2. 広義拡散方程式 .....	6
2.1 人工バリアの構造及び解析対象領域 .....	6
2.2 放射性壊変及び核種移行形態 .....	8
2.3 広義拡散方程式系のテンソル表現 .....	10
2.3.1 物質移動テンソル .....	11
2.3.2 放射性壊変テンソル .....	12
2.3.3 ソーステンソル .....	12
2.3.4 化学反応テンソル .....	13
2.4 平均移動特性 .....	15
3. 複数崩壊連鎖を取り扱うことが可能な広義拡散方程式のプロトタイププログラムの 開発 .....	18
3.1 概要 .....	18
3.2 .prespf ファイルによるSPADE .spf ファイルの作成 .....	19
3.3 例題演習 .....	25
3.3.1 概要及び.prespfファイル作成のために必要となる情報 .....	26
3.3.2 計算結果 .....	31
3.3.3 単一崩壊系列の場合との比較 .....	64
3.4 今後の改良点及びプログラム最終仕様 .....	70
3.4.1 広義拡散方程式のテンソル表現に関する改良点 .....	70
3.4.2 .prespf ファイルによる定式化とWASPによる.spfファイル作成の自動 化についての改良点 .....	73
3.4.3 SPADE（改良Gear法）による数値解析に関する改良点 .....	74
3.4.4 計算効率についての検討 .....	75
3.4.5 プログラム最終仕様の提案 .....	76
4. 不確実性解析の必要性、手法及び各手法の問題点と対策についての調査 .....	79

4.1	性能評価に内在する不確実性因子及び不確実性解析の必要性	79
4.2	過去の性能評価研究における不確実性の取り扱い手法及び各手法の問題点	82
4.2.1	保守的評価	83
4.2.2	最良推定	83
4.2.3	感度解析	84
4.2.4	確率論的手法	85
4.3	課題のまとめ	86
4.3.1	「確信の程度 (degree of belief)」の取り扱い	87
4.3.2	パラメータ以外の不確実性の取り扱い	88
4.4	これまでの不確実性解析の問題点に対する代替的手法	90
4.4.1	ファジー理論	91
4.4.2	シャドウモデル	99
4.5	今後の不確実性解析の目標及び研究計画の提案	102
4.5.1	不確実性解析の目標	102
4.5.2	研究計画	105
5.	単一崩壊連鎖を例とした感度解析の実施	107
5.1	体系的感度解析の手順	107
5.1.1	感度解析手法	107
5.1.2	本解析に用いる感度解析手法の選定	111
5.2	一定環境条件下での核種移行プロセスに関する感度解析の実施	111
5.2.1	シャドウモデルの設定	111
5.2.2	核種移行解析の結果	114
5.2.3	感度解析	121
5.3	沈澱・溶解及び吸着の瞬時平衡を含む一定の核種移行プロセスに対する環境条件変化の影響の感度解析の実施	131
5.3.1	シャドウモデルの設定	131
5.3.2	核種移行解析の結果	133
5.3.3	感度解析	135
5.4	今後の研究に適用すべき感度解析手法の提案	163
6.	まとめ及び今後の課題	165

参考文献..... 167

付録一1 WASPのインストール及び実行方法 ..... 168  
付録一2 .prespf ファイル及び対応する.spfファイル ..... 195  
付録一3 回帰分析用MATHEMATICA ファイルの例 ..... 199  
付録一4 SVDによるパターン認識用MATHEMATICA ファイルの例 ..... 207  
付録一5 既往のシステム性能評価における不確実性解析の事例 (NIREX 95) .. 213

## 図リスト

図1-1 人工バリア中核種移行挙動の全体像	5
図2.1-1 解析対象領域の概念図	7
図2.1-2 「速い」反応及び「遅い」反応による核種移行形態間転移の模式図	9
図3.3.2-1 ニアフィールドからの核種放出率( $Am, \mu=0.1$ )	32
図3.3.2-2 ニアフィールドからの核種放出率( $Am, \mu=10$ )	33
図3.3.2-3 ニアフィールドからの核種放出率( $Pu, \mu=0.1$ )	34
図3.3.2-4 ニアフィールドからの核種放出率( $Pu, \mu=10$ )	35
図3.3.2-5 ニアフィールドからの核種放出率( $Np, \mu=0.1$ )	36
図3.3.2-6 ニアフィールドからの核種放出率( $Np, \mu=10$ )	37
図3.3.2-7 ニアフィールドからの核種放出率( $U, \mu=0.1$ )	38
図3.3.2-8 ニアフィールドからの核種放出率( $U, \mu=10$ )	39
図3.3.2-9 ニアフィールドからの核種放出率( $Th, \mu=0.1$ )	40
図3.3.2-10 ニアフィールドからの核種放出率( $Th, \mu=10$ )	41
図3.3.2-11 人工バリア内の溶存イオン濃度分布( $Am^{241}, \mu=0.1$ )	42
図3.3.2-12 人工バリア内の溶存イオン濃度分布( $Am^{241}, \mu=10$ )	43
図3.3.2-13 人工バリア内の溶存イオン濃度分布( $Np^{237}, \mu=0.1$ )	44
図3.3.2-14 人工バリア内の溶存イオン濃度分布( $Np^{237}, \mu=10$ )	45
図3.3.2-15 人工バリア内の溶存イオン濃度分布(全 $U, \mu=0.1$ )	46
図3.3.2-16 人工バリア内の溶存イオン濃度分布(全 $U, \mu=10$ )	47
図3.3.2-17 人工バリア内の溶存イオン濃度分布( $U^{238}, \mu=0.1$ )	48
図3.3.2-18 人工バリア内の溶存イオン濃度分布( $U^{238}, \mu=10$ )	49
図3.3.2-19 人工バリア内の溶存イオン濃度分布( $U^{236}, \mu=0.1$ )	50
図3.3.2-20 人工バリア内の溶存イオン濃度分布( $U^{236}, \mu=10$ )	51
図3.3.2-21 人工バリア内の溶存イオン濃度分布( $U^{235}, \mu=0.1$ )	52
図3.3.2-22 人工バリア内の溶存イオン濃度分布( $U^{235}, \mu=10$ )	53
図3.3.2-23 人工バリア内の溶存イオン濃度分布( $U^{234}, \mu=0.1$ )	54
図3.3.2-24 人工バリア内の溶存イオン濃度分布( $U^{234}, \mu=10$ )	55
図3.3.2-25 人工バリア内の溶存イオン濃度分布( $U^{233}, \mu=0.1$ )	56
図3.3.2-26 人工バリア内の溶存イオン濃度分布( $U^{233}, \mu=10$ )	57
図3.3.2-27 人工バリア内の溶存イオン濃度分布( $Np^{237}, \mu=0.1$ )	58

図3.3.2-28	人工バリア内の溶存イオン濃度分布(Np237, $\mu=10$ )	59
図3.3.2-29	人工バリア内の沈殿濃度分布(全U, $\mu=0.1$ )	60
図3.3.2-30	人工バリア内の沈殿濃度分布(全U, $\mu=10$ )	61
図3.3.2-31	人工バリア内の沈殿濃度分布(全233, $\mu=0.1$ )	62
図3.3.2-32	人工バリア内の沈殿濃度分布(U233, $\mu=10$ )	63
図3.3.3-1	単一崩壊系列と複数崩壊系列での溶存イオン濃度分布の比較 (U233, $\mu=0.1$ )	65
図3.3.3-2	単一崩壊系列と複数崩壊系列での溶存イオン濃度分布の比較 (U233, $\mu=10$ )	66
図3.3.3-3	単一崩壊系列と複数崩壊系列での沈殿濃度分布の比較(U233, $\mu=0.1$ )	67
図3.3.3-4	単一崩壊系列と複数崩壊系列での沈殿濃度分布の比較(U233, $\mu=10$ )	68
図3.3.3-5	単一崩壊系列と複数崩壊系列での核種放出率の比較(U233, $\mu=0.1$ )	69
図4.3.1-1	リスク希釈の例	87
図4.3.2-1	パラメータについての不確実性解析の手順	89
図4.4.1-1	「おおよそ1の実数」に該当するファジー集合とメンバーシップ ファンクションの例	92
図4.4.1-2	MUNVARプロジェクトで提案されたファジー理論に基づく性能評価及び 不確実性解析の手順	95
図4.4.1-3	あるシナリオ・概念モデルによって算出される被ばく線量のファジー集合 及び条件付きメンバーシップファンクション	97
図4.4.1-4	あるシナリオ・概念モデルによって算出される被ばく線量のファジー集合 及び条件付きメンバーシップファンクション	98
図4.4.1-5	最終的な評価結果のファジー集合及びメンバーシップファンクション (細線は個別のシナリオ・概念モデルについてのメンバーシップファンク ションに対応)	99
図4.4.2-1	シャドウモデリングと通常モデリングにおける方法論の概念的な比較	100
図5.2.1-1	既知のモデルに対応する $\alpha C$ の例	113
図5.2.1-2	既知のモデル及び対応するシャドウモデル	115
図5.2.2-1	統計的に作成された広義拡散係数についてのシャドウモデルの例	116
図5.2.2-2	人工バリア内核種濃度分布 (Case No.100)	117
図5.2.2-3	人工バリア内核種濃度分布 (Case No.25)	118
図5.2.2-4	人工バリア内核種濃度分布 (Case No.50)	119
図5.2.2-5	人工バリア内核種濃度分布 (Case No.74)	120

図5.2.3-1	Hybrid 法による回帰及び線形回帰の結果の比較	123
図5.2.3-2	最大核種放出率のヒストグラム	124
図5.2.3-3	Np-237の最大放出率に対するステップワイズな線形回帰分析における 残差の減少	125
図5.2.3-4	Np-237の最大放出率に対するステップワイズな線形回帰 (スキッタープロット)	126
図5.2.3-5	Np-237最大放出率についてのランク回帰分析の結果 (4ステップ目)	129
図5.3.1-1	環境条件変化を記述するためのシャドウモデルの概念図	133
図5.3.1-2	環境条件変化のシャドウモデルによる表現の例	134
図5.3.2-1	環境条件変化についてのシャドウモデル及び対応する計算結果 (Np-237全濃度分布の時間変化)の例(1)	136
図5.3.2-2	環境条件変化についてのシャドウモデル及び対応する計算結果 (Np-237全濃度分布の時間変化)の例(2)	137
図5.3.2-3	環境条件変化についてのシャドウモデル及び対応する計算結果 (Np-237全濃度分布の時間変化)の例(3)	138
図5.3.3-1	環境条件変動を考慮したNp-237最大放出率解析結果に対する ランク回帰分析の結果	140
図5.3.3-2	Np-237最大放出率の頻度分布	143
図5.3.3-3	各グループに対するSVDにより得られた固有値	145
図5.3.3-4	グループ1に属するシャドウモデルの共通の特徴	154
図5.3.3-5	グループ2に属するシャドウモデルの共通の特徴	155
図5.3.3-6	グループ3に属するシャドウモデルの共通の特徴	156
図5.3.3-7	グループ4に属するシャドウモデルの共通の特徴	157
図5.3.3-8	グループ5に属するシャドウモデルの共通の特徴	158
図5.3.3-9	グループ6に属するシャドウモデルの共通の特徴	159
図5.3.3-10	グループ7に属するシャドウモデルの共通の特徴	160

## 表リスト

表1-1	核種移行形態についての選択肢	4
表1-2	移行形態間の核種配分に寄与するプロセスについての選択肢	4
表2.4-1	$\alpha$ 及び $\gamma$ の全濃度Cの関数としての代数表現の一覧表	16
表3.3.1-1	解析対象とする崩壊系列及び同位体	26
表3.3.1-2	各同位体の初期インベントリ	27
表3.3.1-3	移行形態及び瞬時平衡グループ	27
表3.3.1-4	各元素の分配係数	28
表3.3.1-5	各小領域の形状及び特性	29
表3.3.1-6	各元素の溶解度	31
表5.2.2-1	一定環境条件下での種々の核種移行プロセスについての解析条件	121
表5.2.3-1	線形回帰により得られた各核種の最大放出率に対するパラメータの 重要度順位	127
表5.2.3-2	ランク回帰により得られた各核種の最大放出率に対するパラメータの 重要度順位	130
表5.2.3-3	各核種の最大放出率に対する最良の線形回帰モデル及びランク回帰 モデルの多重相関係数	131
表5.3.2-1	一定核種移行プロセスについて種々の環境条件変化を考慮した 解析の条件	135
表5.3.3-1(1)	各グループにおける低感度変換 (グループ1)	146
表5.3.3-1(2)	各グループにおける低感度変換 (グループ2)	147
表5.3.3-1(3)	各グループにおける低感度変換 (グループ3)	148
表5.3.3-1(4)	各グループにおける低感度変換 (グループ4)	149
表5.3.3-1(5)	各グループにおける低感度変換 (グループ5)	150
表5.3.3-1(6)	各グループにおける低感度変換 (グループ6)	151
表5.3.3-1(7)	各グループにおける低感度変換 (グループ7)	152
表5.3.3-2	各グループにおけるシャドウモデルで保存されている図形的及び 現象論的特徴	161

## はじめに

高レベル放射性廃棄物地層処分の性能評価には、多様な不確実性が含まれる。この不確実性の種類を性能評価の手順に則して分類すれば以下の様なものを挙げることができる。

- (1) 処分された廃棄物中の放射性物質が人間に影響を及ぼす過程あるいはこの影響程度を規定する環境条件の将来の変遷に関するFEPs(Features, Events and Processes)とこれらの組み合わせの選定についての不確実性 (シナリオ不確実性)
- (2) 選定された個々のFEPs、及びFEPs間の相関についての具体的な現象理解とその数学的な定式化に関する不確実性 (モデル不確実性)
- (3) 定式化された数学モデルを用いて解析を行う際の入力データの選定に関する不確実性 (パラメータ不確実性)

上記のいずれ (FEPs及びこれらの組み合わせの選定、モデルの作成、及び入力データ値の選定) においても、選択の可能性は複数存在しており、しかも評価対象となる時間・空間スケールの大きさに起因する観察結果や経験の不足のために、いずれの選択肢を採ることが適切かを判断する際に主観的な要素の介入を完全に排除することは極めて困難である。このことは、これら複数の選択肢からの選択の問題が一意的には行われ得ないことを意味し、つまり、性能評価の結果に何がしかの不確実性の影響が含まれることは不可避であると考えなければならない。

このことは、性能評価研究の各段階を通じて極めて重要な意味を持つこととなる。例えば性能評価の実施に先立ち設計、シナリオ解析、モデル開発及びデータ収集を行う準備段階においては、引き続き行われる性能評価に含まれる不確実性をできるだけ小さくすることが課題であり、このために、それぞれの不確実性を減らすための課題 (設計変更によって該当する不確実性の影響を低減する、保守的なモデルを用いることによって該当する不確実性因子が顕在化することを防ぐ、基礎的な研究を通じて現象理解そのものに内在する本質的な不確実性を低減する、等) の重要度分類を行うことが必要となる。性能評価研究が全体として多くの研究領域にまたがるものであることを考えれば、この点はプロ



ジェクト全体の収束性を保つ上で極めて重要である。

また、実際に評価を行い、地層処分安全性についてのある（暫定的なものであったとしても）結論を導く際には、その判断の根拠としての評価結果に含まれる不確実性の種類と大きさを付記することが必須である。これは、統計的な評価手法を用いる場合にはもちろん明示的に為されることとなり、また保守的な決定論的評価においても実際の被ばく線量が算出された決定論的な上限値を上回らないことの確信の程度（信頼性レベル）を示すことによって為されなくてはならない。

不確実性解析とは、前述した種々の選択肢についてそれぞれの確からしさを表現する「重み付け」（確率、ファジー理論におけるメンバーシップファンクション、等。4. 参照。）を施すことにより、これら各選択肢のあらゆる組み合わせを包括した集合（つまり評価結果の分布）の期待値や信頼性上限等の統計的な情報（あるいは相当する定性的情報）を明らかにする作業である。評価の各段階において必要となる不確実性の取り扱いの内、これまで最も積極的に研究の対象とされてきたものは（3）のパラメータ不確実性である。これは4.で詳述する様々な手法、例えば通常のパラメータ性能評価モデルを用い入力データのある統計分布を持つ母集団からサンプリングすることによって行われる統計的な不確実性解析によって定量化することが可能である。より具体的な例としては、例えば人工バリア中の核種挙動についてパラメータの不確実性の影響を低減するための課題として最も重要なものは溶解度を算出するための熱力学データベースの確立であり、インベントリ制限となる少数の核種や娘核種の沈澱成長といった問題を抱えるAmやPuといった例外を除けば分配係数取得の重要性はあまり高くないといった重要度分類の結果も得られている。しかしながら、この結果はあくまで(1)や(2)の不確実性の存在を無視したものであり、感度解析に用いるモデルやその前提となるシナリオが変われば、当然、変わる可能性がある。実際、最近の研究では、放射性元素の濃度が溶解度に達すると瞬時に沈澱が形成され過飽和状態は決して生じないという従来のいわゆる瞬時平衡溶解度限界モデルに代わり、溶解・沈澱の反応速度を現実的にモデル化した例では、評価結果が溶解度に支配されるのは沈澱反応が数週間のタイムスケールで生じる速い反応の場合に限られ、反応がこれよりも遅い場合には溶解度は人工バリアシステムからの核種放出率を実効的に制限する要因とはなり得ないことが示されている[Takase and Grindrod, 1994]。従って、理想的には、他の二つの不確実性要因についても総合的に考慮することが可能な手法を用いることが望ましい。しかし、現実的にはこれらの不確実性因子に対応する選択肢を上記と同様の統計的な手法において変動させることは即ち解析モデル自体の変更となってしまうために、こ

れまでシナリオ不確実性あるいはモデル不確実性にも併せて適用可能な定量的な解析手法は開発されていない。

本研究は、前出の三種類の不確実性因子（シナリオ、モデル、及びパラメータの複数の選択肢）の全てについて、定量的な感度解析と不確実性解析とを行うことを可能とする手法の開発を目的としたものである。より具体的には、人工バリア内の物質移動が分子拡散によって支配されることのみを前提として、溶存イオン、吸着種、コロイド、あるいは沈澱といった複数の化学形態が相互に相転移しつつ移行する過程を種々の内部あるいは外部事象の影響により空間的にも時間的にも変化する環境条件の下に解析するという一般性の高い問題を、各現象が共通して持っている特性のみを括りだした広義拡散方程式により表現し、さらにこの方程式に含まれる自由度を広義拡散係数と呼ばれる量の代数的な表現として各現象に特有な性質を付加するという方法により取り扱う手法を開発しその適用性を確立することを目標とする。

昨年度の研究においては、単一崩壊系列のみに着目して、ガラス溶解挙動や、コロイド生成・移行、速度論的な溶解・沈澱反応、といった広範な核種移行プロセスを上記手法で表現し、隆起・浸食や酸化性地下水侵入といった事象に起因する環境条件変化の下でのこれらの移行プロセスの振る舞いについての感度解析を実施した。この成果を踏まえ、本年度は来るべき性能評価研究第二次成果とりまとめに向けて、実用性の高いソフトウェアの基盤（プロトタイプコード）を開発し、その適用方法の具体的手順（感度解析の実施手順）を確立するとともに、単なる感度の分析にとどまらず、前出の各選択肢にそれぞれの確からしさについての専門家の主観的な判断に対応した「重みづけ」を施した不確実性解析を行う上での基本的な方向性を明らかにすることを目標とする。具体的には、

- (1) 複数崩壊連鎖を同時に取り扱うことの可能な広義拡散方程式のプロトタイププログラムの開発
- (2) 上記プログラムを用いた感度解析の体系的・効率的な実施手順の検討及び予備的感度解析の実施
- (3) 不確実性解析の必要性、手法及び各手法の問題点と対策についての調査・検討並びに今後の研究開発計画の提案

をそれぞれ行うこととする。

## 1. 人工バリア中核種移行挙動

本節では、2.で行う広義拡散方程式の定式化に先立ち、昨年度報告書（高瀬、中安、1995）に基づき解析対象として考慮すべき人工バリア中核種移行挙動の全体像を整理しておくこととする。なお、詳細については上記報告書を参照されたい。

人工バリア中核種移行挙動の全体像は、核種の移行形態についての選択肢（表1-1）及びこれらの異なる移行形態間で核種の配分に寄与するプロセスについての選択肢（表1-2）を組み合わせることによって理解されるべきである。

表1-1 核種移行形態についての選択肢

(1) ガラス固化体中に固定化された状態
(2) 溶存イオン
(3) 吸着種
(4) 真性コロイド
(5) 疑似コロイド
(6) 吸着あるいは補足されたコロイド
(7) 沈澱（安定相）
(8) 沈澱（不安定相）

表1-2 移行形態間の核種配分に寄与するプロセスについての選択肢

(1) ガラスからの核種放出
(2) 核種の溶解・沈澱
(3) コロイド形成・解離
(4) 溶存イオンの吸脱着
(5) コロイドの吸脱着
(6) コロイドの濾過及び凝集による固定化
(7) 結晶化

以上二種類の選択肢を組み合わせた核種移行挙動の全体像を図1-1にまとめる。同図に

示した通り、人工バリア中に存在する放射性核種は、複雑に組み合わせられた化学あるいは物理的なプロセスによってそれぞれ移行特性の異なる形態間を転移しつつ分子拡散することとなる。2. 以降で具体化する広義拡散方程式は、原則として図1-1に示す全ての移行形態あるいはプロセスに共通のものを括りだし、かつ、残された自由度を用いて個々の現象に特有の性質を広義拡散係数の代数表現として取り扱うことが可能なものであることが求められる。

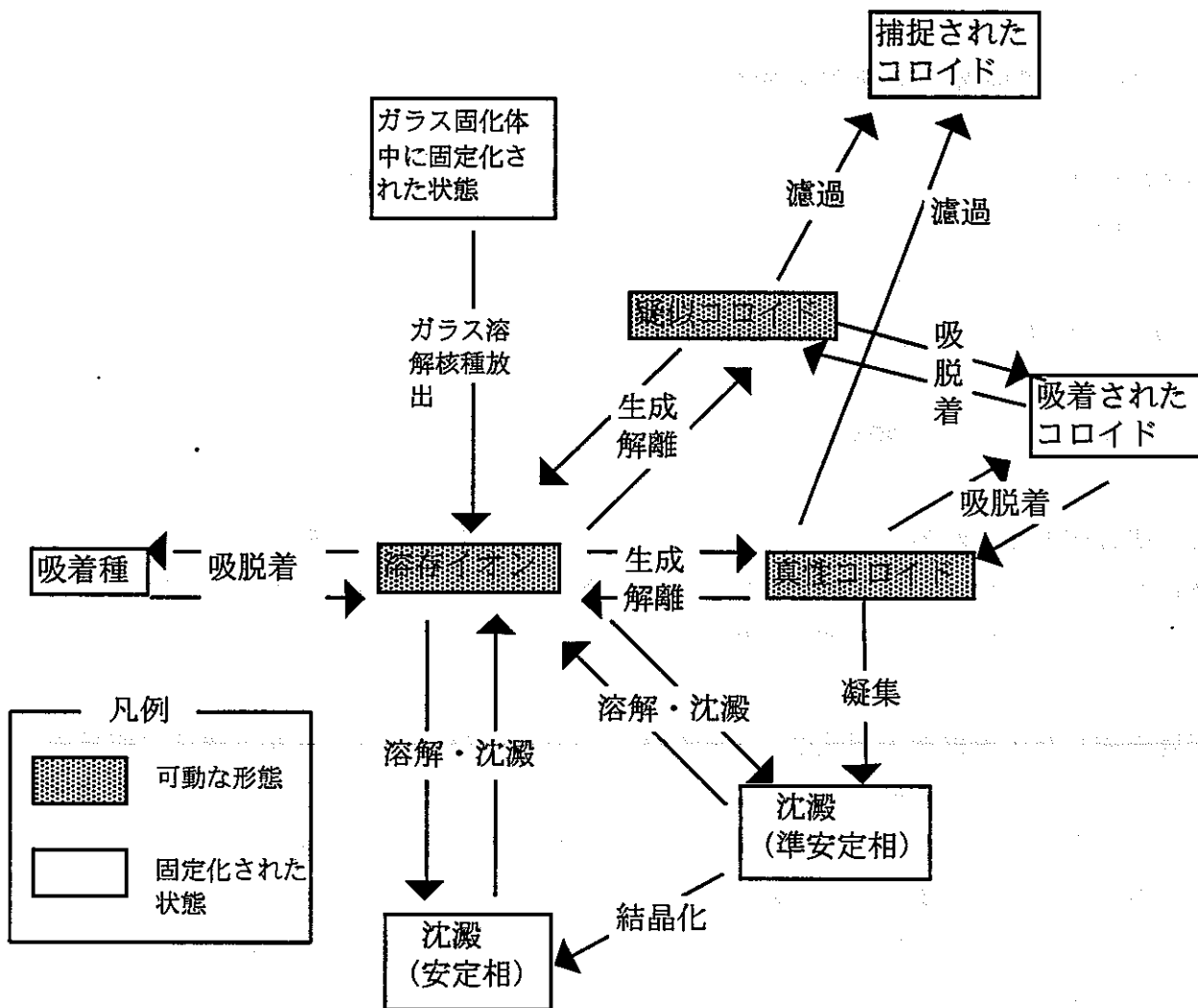


図1-1 人工バリア中核種移行挙動の全体像

## 2. 広義拡散方程式

ここでは、1. に述べた各現象に共通した部分即ち分子拡散のみを固定し、他の一切の要素を不定とした最も一般的な形式の拡散方程式である広義拡散方程式の導出と定式化を行う。本年度の定式化の眼目とするところは、後述する複数崩壊連鎖への拡張を予め念頭に置いて、最も複雑となるであろう核種の移行形態転移に関する部分をテンソル表現とするという点である。このことにより、3.に述べる様なSPADEの.prespfファイルの構造が極めて見通しの良いものとなる。

### 2.1 人工バリア構成及び解析対象領域

性能評価研究成果第一次とりまとめ（以下、平成3年度報告書と呼ぶ）あるいは昨年度の本研究と同様人工バリアシステムとして、代表的には、

- ・高レベル放射性廃棄物ガラス固化体
- ・炭素鋼製オーバーパック
- ・高圧縮ベントナイト緩衝材

からなる構成が考えられる。また、人工バリアシステム中の核種移行解析に対して適切な境界条件を与えるために、周囲の母岩特に坑道掘削により形成されると考えられる「ゆるみ域」を含めたニアフィールド領域を想定することができる。

昨年度作成した広義拡散方程式は、上記の人工バリア及びニアフィールド構成に直接対応したものであり、また領域の定義は固定されたものであった。しかしながら、これまでに述べてきた様に本手法が解析上の柔軟性を最大限に確保することを眼目とするものであることを考えれば、まず第一にこの領域設定が解析の目的に応じて自由に設定・変更可能であることが望ましいことは明らかである。そこで、本年度開発する広義拡散方程式では、人工バリアシステムとそれを取りまく周辺母岩が円筒座標系  $(x, r, \theta)$  において  $x, \theta$  についての対称性を有すること、即ち円筒座標系一次元  $(r)$  において近似されることのみを制約条件として、これを任意数  $P$  の小領域（原点を含むものは単位厚さの円盤、これ以外は同じく単位厚さの輪となる）に区分できるものとする（図2.1-1）。そして、広義拡散方程式の形式（例えばソースの有無）及び後述する広義拡散係数の代数表現（吸着タイプの相異等）はそれぞれ各小領域毎に独立して設定可能なものとする。

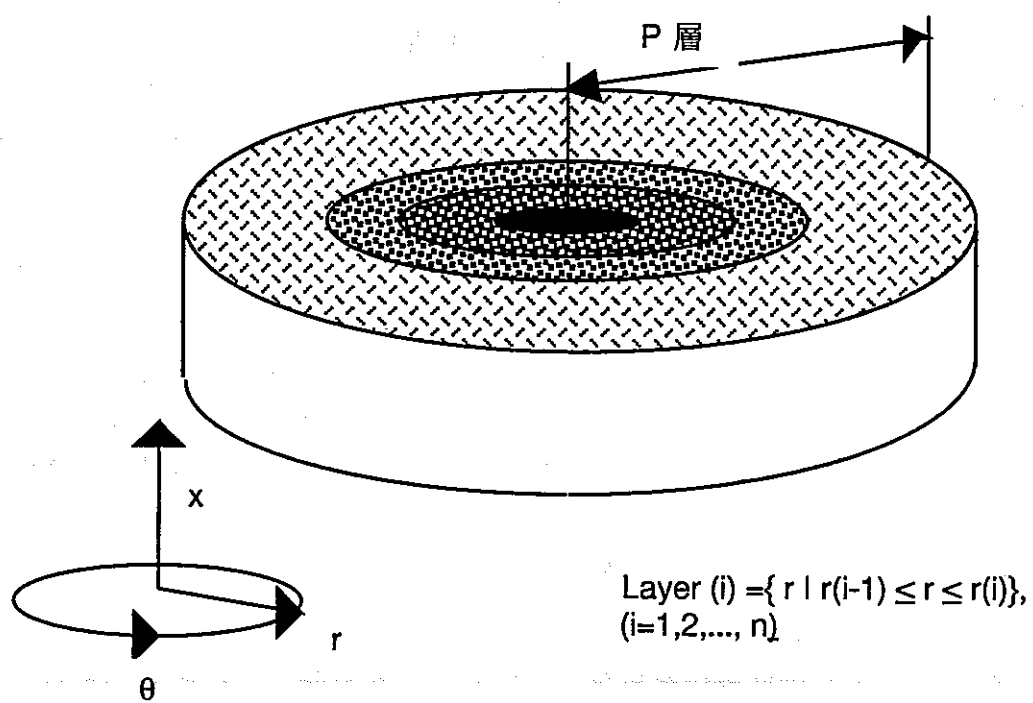


図2.1-1 解析対象領域の概念図

## 2.2 放射性壊変及び核種移行形態

昨年度の報告書（高瀬、中安、1995）で既に述べたように、広義拡散方程式は分子拡散により移動する核種が異なる拡散速さの状態間を転移する過程を広範に表現可能なものであることが必要であり、また、この様な転移の可能性としては広い意味での化学反応による核種移行形態の変化と放射性壊変及びこれらの複合的な効果を考慮する必要がある。これらを取り扱う上では、まず、放射性壊変について各同位体が $4n - 4n + 3$ までの4種類の連鎖のうちのどれに属し、その中でどの順位に位置するかを特定することが必要である。つまり、放射性壊変の情報は基本的に同位体に対応して与えられるべきものである。しかしながら、化学反応については事情は異なったものとなる。化学反応はあくまで元素に対応して定義されるべきものであり、各同位体の状態量（例えば濃度）に加えて、これらを元素毎に括った元素濃度を定義し、これに基づいて化学反応項を立式する必要がある。また、本研究で取り扱う化学反応には、局所瞬時平衡を達成し得る程度に「速い反応」とそれ以外即ち非平衡の可能性を含めて速度論的な取り扱いが必要となる「遅い反応」とが含まれる。また、上記報告書で述べた通り、互いに「速い反応」のみによって対応づけられた移行形態間（例えば瞬時吸着平衡にある溶存イオンと吸着種）には化学的な平衡関係に対応する質量作用式（数学的には、これらは非線形の代数方程式として理解される）が成立する。このため、これらの「速い反応」のみによって対応づけられた移行形態のグループは互いに従属関係にあり、一つの移行形態を代表として採れば他は従属変数として表現可能である。このことは、これらの「速い反応」のみによって対応づけられた移行形態のグループ（以下、簡単のため瞬時平衡グループと呼ぶ）についての総濃度がわかればこのグループに含まれる全ての個々の移行形態の濃度は決定され、従ってこの瞬時平衡グループ全体としての平均拡散係数も決定されることを意味している。つまり、広義拡散方程式に基づく計算の実施という観点のみから言えば、一つの瞬時平衡グループ内での各移行形態濃度を算出する必要はなく、代わりに瞬時平衡グループの総濃度のみを未知数として方程式を立式すれば良いということになる。各移行形態の濃度は、必要に応じて、計算が終了してから瞬時平衡グループの総濃度に基づき算出することができる。以上の状況を図2.1-2に模式的にまとめることとする。

注記：上の議論は、図2.1-2の例で言えば合計13個存在する移行形態のそれぞれを個別に定式化する必要はなく、3種類の瞬時平衡グループについてそれぞれ速度論的反応による相互の物質交換を含んだ広義拡散方程式と広義拡散係数の代数表現とを与えれば良いということの意味している。

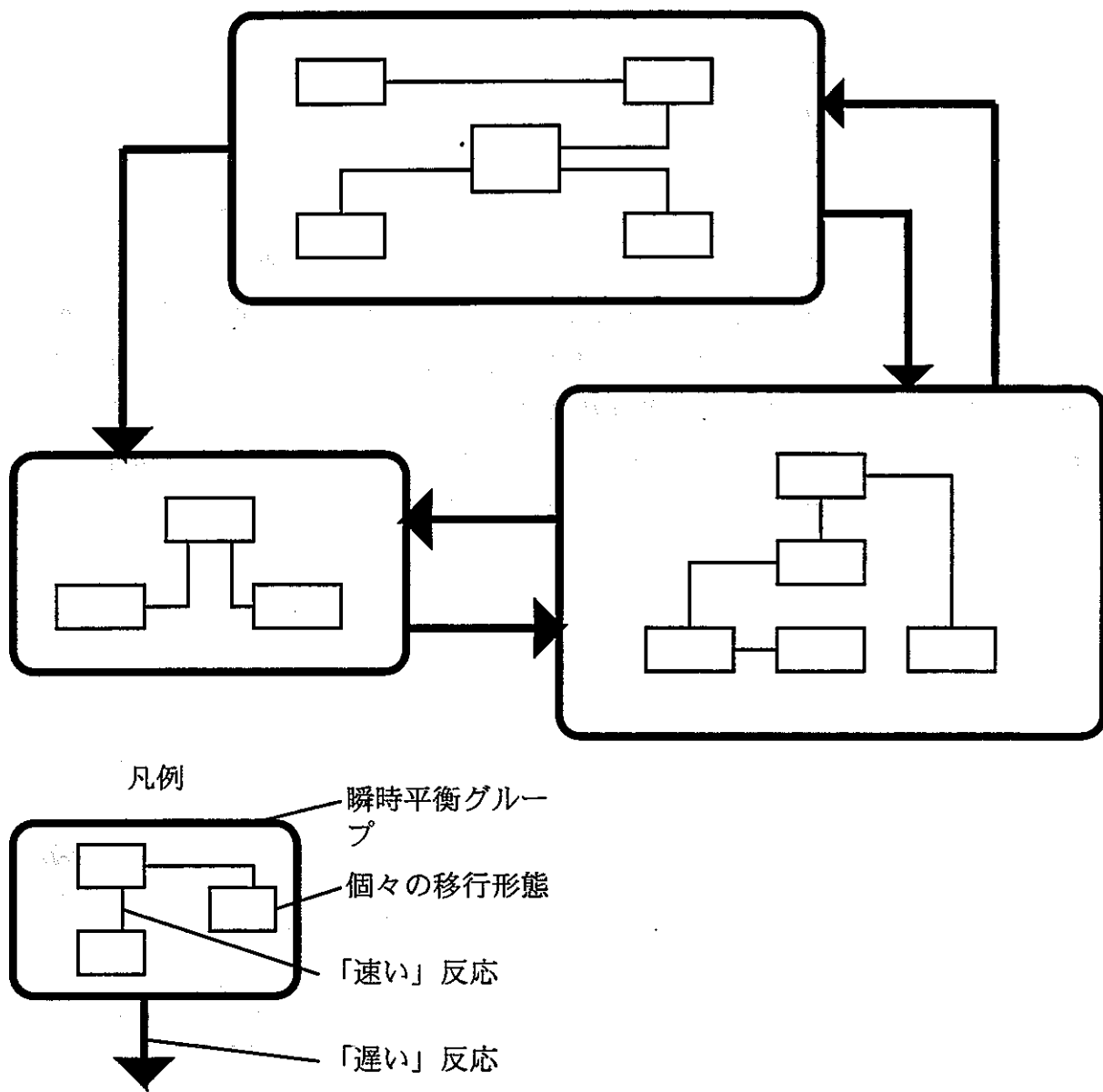


図2.1-2 「速い」反応及び「遅い」反応による核種移行形態間転移の模式図



### 2.3 広義拡散方程式系のテンソル表現

前節に述べた放射性壊変と化学反応に対応して必要となる核種の区分あるいは括り方を考慮して、以下の一般的な問題を考えることとする。

合計I個の同位体（それぞれの同位体を $i=1,2,\dots,I$ と呼ぶこととする）を有する合計E個の元素（それぞれの元素を $h=1,2,\dots,E$ と呼ぶこととする）が、G個の瞬時平衡グループ（それぞれのグループを $j=1,2,\dots,G$ と呼ぶこととする）の間を速度論的な即ち「遅い」反応に従って転移しつつ分子拡散する状況を想定する。ここで、ニアフィールドを構成するP個の小領域は、さらに通常の円筒座標系における定間隔の空間差分により離散化されるものとし、以下ではこれらのうちの任意の小領域に着目して、Q個の有限差分メッシュに離散化されるこの小領域のメッシュkについての物質収支式を以下の様に形式的に定式化するものとする。

$$(1) \quad \frac{\partial \mathbf{m}(t)}{\partial t} = \mathbf{T}(m,t) - \Lambda(m,t) + \mathbf{S}(m,t) + \mathbf{R}(m,t)$$

$$m = \theta V C \quad m : \text{質量} \quad \theta : \text{空隙率} \quad V : \text{体積} \quad C : \text{濃度}$$

但し、

質量テンソル  $\mathbf{m} = (m_{ijk}(t)), m_{ijk}(t)$ ; メッシュk（単位体積ではない）における同位体iのうち瞬時平衡グループjに属するものの総質量 [mol]

物質移動テンソル  $\mathbf{T} = (T_{ijk}(m,t)), T_{ijk}(m,t)$ ; メッシュkにおける同位体iのうち瞬時平衡グループjに属するものの分子拡散による正味の物質移動フラックス [mol/s]

放射性壊変テンソル  $\Lambda = (\Lambda_{ijk}(m,t)), \Lambda_{ijk}(m,t)$ ; メッシュkにおける同位体iのうち瞬時平衡グループjに属するものの放射性壊変による正味の質量損失 [mol/s]

ソーステンソル  $\mathbf{S} = (S_{ijk}(m,t)), S_{ijk}(m,t)$ ; メッシュkにおける同位体iのうち瞬時平衡グループjに属するもののソースからの供給フラックス [mol/s]

化学反応テンソル  $\mathbf{R} = (R_{ijk}(m,t)), R_{ijk}(m,t)$ ; メッシュkにおける同位体iのうち瞬時

平衡グループjに属するものの、他の瞬時平衡グループとの間の速度論的反応に伴う正味の質量増加 [mol/s]

以下、式(1)の右辺に含まれる4つの項についてそれぞれの具体形を定めることにより広義拡散係数を定式化することとする。

### 2.3.1 物質移動テンソル

物質移動テンソルは、通常の間筒座標系での差分表現に基づくものとし、形式的には以下のテンソル積として表現される。

$$(2) \quad \mathbf{T} = - \mathbf{A} \mathbf{F}$$

但し、

$\mathbf{A} = (A_{kl}), A_{kl}$ ; 離散化メッシュk及びlの間の断面積 [m<sup>2</sup>]. kとlとが隣接している場合は非零の値を採り、それ以外の場合は0とする。つまり、

$$A_{kl} = \begin{cases} 2\pi \min(r_k, r_l), & \text{if } |k-l|=1, \\ 0, & \text{otherwise.} \end{cases}$$

ここで、 $r_k$  及び  $r_l$  はそれぞれkとlの外側境界の位置とする。

$\mathbf{F} = (F_{ijkl}), F_{ijkl}$ ; 離散化メッシュkからlへの同位体iのうち瞬時平衡グ [m<sup>3</sup>] ループjに属するものの物質移動フラックス密度 [mol/s/m<sup>2</sup>]. kとlとが隣接している場合には非零の値を採り、それ以外の場合は0とする。つまり、 $m_{ijk}$  に対応する同位体濃度を  $c_{ijk}$  とすれば、

$$F_{ijkl} = \begin{cases} \alpha_{ijkl} \frac{c_{ijl} - c_{ijk}}{\delta r}, & \text{if } l=k+1 \\ \alpha_{ijkl} \frac{c_{ijk} - c_{ijl}}{\delta r}, & \text{if } l=k-1 \\ 0, & \text{otherwise.} \end{cases}$$

ここで、 $\alpha_{h_{jkl}}(C_{h_{jkl}}, t)$ ; 瞬時平衡グループ  $h$  の形態をとる元素 (同位体ではないことに注意)  $h$  の平均 (広義) 拡散係数。また、 $\delta r$  はメッシュ幅を示すものとする。

なお、上の形式的なテンソル積は以下を意味するものとする。

$$T_{ijk} = -\sum_l A_{kl} F_{ijkl}$$

### 2.3.2 放射性壊変テンソル

放射性壊変テンソルは、崩壊連鎖と各同位体の位置及び対応する崩壊定数を記述する崩壊定数テンソルと質量テンソルとの積として形式的に次の様に表現される。

$$(3) \quad \Lambda = \lambda \mathbf{m}$$

但し、

$\lambda = (\lambda_{in}), \lambda_{in}$ ; 崩壊定数テンソル [1/s]。  $i$  と  $n$  が一致する場合及びこれらが同一の崩壊連

鎖に属し、かつ連鎖内で隣接した位置にある場合に非零の数値を採り、それ以外の場合は 0 となる。より具体的に言えば、

$$\lambda_{in} = \begin{cases} \lambda_i, & \text{if } n=i \\ -\lambda_n, & \text{if } n \xrightarrow{\text{decay}} i \\ 0, & \text{otherwise.} \end{cases}$$

但し、再び同様にここでのテンソル積も以下を意味するものとする。

$$\Lambda_{ijk} = \sum_n \lambda_{in} m_{njik}$$

### 2.3.3 ソーステンソル

ソースは分子拡散、放射性壊変及び異なる瞬時平衡グループ間の速度論的反応以外の機構による当該セル内の核種質量の変化を表現するものであり、通常は固化体の存在する領

域でのガラス溶解に伴う核種浸出ソース, SG, あるいはゆるみ域での移流による核種放出 (シンク), SD, のいずれかに対応する。これらは、それぞれ以下の様に定式化される。

$$(4) \quad SG_{ijk} = \begin{cases} \beta_j \omega_i(t) \kappa(t), & \text{if } r_k \leq r_{\text{glass}} \\ 0, & \text{otherwise.} \end{cases}$$

但し、

$\beta_j$ ; 瞬時平衡グループ  $j$  がガラス固化体から浸出する時点での移行形態を含む場合

1、それ以外は 0 [-]。

$\omega_i(t)$ ; 時刻  $t$  でのガラス固化体中の同位体  $i$  のモル濃度 [mol (同位体) / m<sup>3</sup> (ガラス)]

$\kappa(t)$ ; 時刻  $t$  でのガラス固化体の溶解速度 [m<sup>3</sup>/s]

$$(5) \quad SD_{ijk} = \begin{cases} \left( \sum_h E_{hi} \gamma_{hjk} (M_{hjk}, t) \right) m_{ijk}, & \text{if } r_k \geq r_{\text{buffer}}, \\ 0, & \text{otherwise.} \end{cases}$$

但し、

$E = (E_{hi})$ ,  $E_{hi}$ ; 同位体  $i$  が元素  $h$  に属する場合 1、それ以外は 0 [-]。

$\gamma_{hjk}$ ; 元素  $h$  の瞬時平衡グループ  $j$  についての平均移流フラックス [l/s]

(瞬時平衡グループ  $j$  に含まれる各化学形態間の平均であり、一般には元素毎に異なる)

$M_{hjk}$ ; 有限差分メッシュ  $k$  内での瞬時平衡グループ  $j$  の形態を採る元素  $h$  の総質量 [mol]

### 2.3.4 化学反応テンソル

$R$  の成分である  $R_{ijk}$  は、有限差分メッシュ  $k$  内での他の瞬時平衡グループの速度論的な反応により瞬時平衡グループ  $j$  の形態を採る元素  $h$  が生成されることに伴い、 $h$  の同位体  $i$  の質量が増加する割合として定義される。つまり、

$$(6) \quad \mathbf{R} = \mathbf{B} \mathbf{E} \mathbf{\Omega}.$$

但し、

$\mathbf{B} = (\mathbf{B}_{hojk}), \mathbf{B}_{hojk}(\mathbf{C}_{hok}, \mathbf{C}_{hjk}, t)$ ; 元素 h の有限差分メッシュ k 内における瞬時平衡グループ o から j への速度論的反應の総フラックス [mol/s]。

$\mathbf{\Omega} = (\mathbf{\Omega}_{ioik}), \mathbf{\Omega}_{ioik} = \frac{C_{ioik}}{C_{hok}}$ ; 有限差分メッシュ k 内における瞬時平衡グループ o での元

素 h の濃度に対する同位体 i の存在比 [-]。

なお、これまでと同様、(6)式は以下を意味するものとする。

$$R_{ijk} = \sum_h \sum_o B_{hojk} E_{hi} \Omega_{ioik}.$$

B の具体形としては、任意の反應速度式を取り扱うことが可能である (但し、多くの「遅い」反應についてそうであるように、反應の実効的な律速過程が一つの素反應である場合には速度表現にこれに対応した中間生成 (反應) 物が含まれることとなる。この様な場合には、これらの中間的な化学種についても方程式系に含めることが必要である)。B の代表的な例としては、昨年度の研究で取り扱った以下の一次反應速度式がある。

(7)

$$B_{hojk} = \mu_{hojk} (k_{hojk}(t) - f(C_{hok}, C_{hjk})) H (H(k_{hojk}(t) - f(C_{hok}, C_{hjk})) + H(C_{hok}))$$

但し、

$\mu_{hojk}$ ; 元素 h の瞬時平衡グループ o から瞬時平衡グループ j への反應の速度定数

$k_{hojk}$ ; 元素 h の瞬時平衡グループ o から瞬時平衡グループ j への反應の平衡定数

$f(C_{hok}, C_{hjk})$ ; 質量作用式

$H(\cdot)$ ; Heaviside ステップ関数

(7)式において、瞬時平衡グループ o が溶存イオンを含むものであり、また瞬時平衡グループ j が沈澱を含むものである場合、この式は次の様に書き直される。

$$(8) \quad B_{hojk} = \mu_{hojk} (k_{hojk} - C_{hok}) H [ (H (C_{hok} - k_{hojk}) + H (C_{hjk})) ]$$

## 2.4 平均移動特性

上述した広義拡散方程式は、 $\alpha_{hjk}$  及び  $\gamma_{hjk}$  という瞬時平衡グループ全体について平均化された移動特性（それぞれ分子拡散、及び移流に対応）を含むものである。そして、既に述べた様にこれら二つの平均移動特性の具体形が与えられないために広義拡散方程式は不定となり、逆に、この自由度を利用して様々な移行形態間転移を簡便にモデル化することが可能となる。表2.4-1に、本研究でこれまでに定式化した  $\alpha$  及び  $\gamma$  の代数表現をまとめる。

表2.4-1  $\alpha$  及び  $\gamma$  の全濃度  $C$  の関数としての代数表現の一覧表 (その1)

	$\alpha(C)$	$\gamma(C)$
線形吸着	$\alpha = \frac{D_{ion}}{R_D}$ <p><math>D_{ion}</math>; 溶存イオンの拡散係数 <math>R_D</math>; 遅延係数</p>	$\gamma = \frac{q}{R_D}$ <p><math>q</math>; 移流フラックス</p>
非線形吸着	$\alpha = \frac{D_{ion} \frac{-1-a+bC + \sqrt{(bC-a-1)^2+4bC}}{2bC}}{D_{ion} \frac{-1-a+bC + \sqrt{(bC-a-1)^2+4bC}}{2bC}}$ <p><math>a, b</math>; ラングミュア吸着等温線の定数。 <math>s = \frac{ac}{1+bc}</math></p>	$\gamma = \frac{q \frac{-1-a+bC + \sqrt{(bC-a-1)^2+4bC}}{2bC}}{q \frac{-1-a+bC + \sqrt{(bC-a-1)^2+4bC}}{2bC}}$
溶解度限界及び線形吸着	$\alpha = \begin{cases} \frac{D_{ion}}{R_D}, & \text{for } C < R_D c^* \\ \frac{D_{ion} c^*}{C}, & \text{for } C \geq R_D c^* \end{cases}$ <p><math>c^*</math>; 溶解度</p>	$\gamma = \begin{cases} \frac{q}{R_D}, & \text{for } C < R_D c^* \\ q \frac{c^*}{C}, & \text{for } C \geq R_D c^* \end{cases}$
溶解度限界及び非線形吸着	$\alpha = \begin{cases} \frac{D_{ion} \frac{-1-a+bC + \sqrt{(bC-a-1)^2+4bC}}{2bC}}{D_{ion} \frac{-1-a+bC + \sqrt{(bC-a-1)^2+4bC}}{2bC}}, & \text{for } C < c^* + \frac{ac^*}{1+c^*} \\ \frac{D_{ion} c^*}{C}, & \text{for } C \geq c^* + \frac{ac^*}{1+c^*} \end{cases}$	$\gamma = \begin{cases} \frac{q \frac{-1-a+bC + \sqrt{(bC-a-1)^2+4bC}}{2bC}}{q \frac{-1-a+bC + \sqrt{(bC-a-1)^2+4bC}}{2bC}}, & \text{for } C < c^* + \frac{ac^*}{1+c^*} \\ q \frac{c^*}{C}, & \text{for } C \geq c^* + \frac{ac^*}{1+c^*} \end{cases}$
(線形) 疑似コロイド、溶解度限界及び線形吸着 (* 1)	$\alpha = \begin{cases} \frac{D_{ion} + \xi D_{pcol}}{R_D + \xi}, & \text{for } C < (R_D + \xi) c^* \\ \frac{(D_{ion} + \xi D_{pcol}) c^*}{C}, & \text{for } C \geq (R_D + \xi) c^* \end{cases}$ <p><math>\xi</math>; 疑似コロイド濃度の溶存イオン濃度に対する比例 (平衡) 定数 <math>D_{pcol}</math>; 疑似コロイドの分子拡散係数</p>	$\gamma = \begin{cases} q \frac{1+\xi}{R_D + \xi}, & \text{for } C < (R_D + \xi) c^* \\ q (1+\xi) \frac{c^*}{C}, & \text{for } C \geq (R_D + \xi) c^* \end{cases}$

注記 \* 1

核種は疑似コロイドに対しても線形に吸着することが仮定されている。

表2.4-1  $\alpha$  及び  $\gamma$  の全濃度  $C$  の関数としての代数表現の一覧表 (その2)

	$\alpha(C)$	$\gamma(C)$
真性コロイド、溶解度限界及び線形吸着；真性コロイド濃度が沈澱濃度に比例する場合	$\alpha = \begin{cases} \frac{D_{ion}}{R_D}, & \text{for } C < R_D c^* \\ \frac{D_{ion}c^* + D_{col}\eta(C - R_D c^*)}{C}, & \text{for } C \geq R_D c^* \end{cases}$ <p><math>D_{col}</math>；真性コロイドの拡散係数  <math>\eta</math>；真性コロイド濃度の沈澱濃度に対する比例定数</p>	$\gamma = \begin{cases} \frac{q}{R_D}, & \text{for } C < R_D c^* \\ q \frac{c^* + \eta(C - c^*)}{C}, & \text{for } C \geq R_D c^* \end{cases}$

注記\* 1

核種は疑似コロイドに対しても線形に吸着することが仮定されている。



### 3. 複数崩壊連鎖を取り扱うことが可能な広義拡散方程式のプロトタイププログラムの開発

#### 3.1 概要

2.に述べた様に、ガラス固化体中に含まれる放射性核種は、人工バリア及びその周囲にあるニアフィールド母岩中において、各時刻及び位置での化学的条件ならびに核種自体の濃度に応じて個々に拡散性の異なる形態間を転移しつつ移動するものである。この様な複数の移行形態間の転移に係る特性は主として化学的なものであり従って元素毎に定義されるべきものである。本章で開発するプロトタイプコードは、この様な問題の枠組みの中において、放射性壊変に伴うある元素の同位体から他の元素の同位体への変化とこれに喚起されて生じる異なる移行形態間の転移さらにはその結果としての移行挙動への影響の解析を正確に行うことがその眼目とするところである。つまり、単一崩壊系列について個別に行う解析では考慮することが不可能な同一元素の複数の同位体間での「反応フラックス」の配分を各時刻、位置における同位体比に対応して正確に行うことを目標とする。

上述した複数同位体の存在に起因する効果のうちこれまでの経験で最も良く知られているのは、恐らく溶解度配分の問題であろう。これは、瞬時平衡溶解度限界モデルにおいて、単一崩壊系列毎に独立して行う計算が全体として見れば溶解度を同位体の個数回重複してカウントしているものであること、従ってある時期存在比が非常に小さくなる同位体については崩壊系列毎の個別計算が無視し得ない程過度に保守的なものとなっている可能性があることを示唆している。この様な崩壊系列毎の個別計算の誤差は、それが安全側のものであること、そして誤差は存在比の小さい同位体のみ顕在化すること、から通常は大きな問題とはならない。しかしながら、存在比の小さい同位体が他の（モル濃度という意味で）支配的な同位体に比して著しく高い毒性を有するものである場合、例えば摂取有害度指数を尺度として見た場合のニアフィールドからの核種放出率を有意に過大評価する可能性がある。以上が複数崩壊連鎖を同時に扱う解析で標的とすべき問題の所在である。

本章では、2.に述べた広義拡散方程式を、任意メンバーの複数崩壊系列、任意数の移行形態グループ及び個々の移行形態について設定し解法することが可能なプロトタイプコードを作成するものとする。より具体的には、解析領域とその離散化、諸物性値、対応する物質移動テンソル、放射性壊変テンソル、ソーステンソル、及び化学反応テンソルと平均

移動係数を記述する汎用DAEソーパーSPADEの.spfファイルを体系的かつ効率的に作成するプリプロセッシングユニットを作成する。

### 3.2 .prespfファイルによるSPADE.spfファイルの作成

2.に述べた広義拡散方程式は、勿論、我々の問題に共通したものであり、従ってこれは同時に作成すべき.spfファイルの共通の構造を与えるものと見ることができる。そこで、本研究ではこの広義拡散方程式、特に上記の種々のテンソルを定義するための表記法を作成し、この表記法に基づく入力情報（.prespfファイルと呼ぶ）を解読してこれに基づき対応する.spfファイルを作成するCプログラムを開発した。以下に、.prespfファイルの構造と、ここでの情報に基づきどの様に.spfファイルが作成されるかをまとめる。

.prespfファイルでは、.spfファイル及び他の一般的なC言語でのプログラミングと同様、各行はキーワードで始まりセミコロンで終了する。また、.spfファイルで定義されていた全てのキーワードに加え、.prespfファイルでは2.の広義拡散方程式に対応して以下の新たなキーワード群が使用可能となっている。

**DECAY CHAIN**

**CHEMICAL STATE**

**COLLECTED STATE**

**STATE DEPENDENCE**

**LAYER**

**POROSITY**

**VOLUME**

**AVERAGE MOBILITY**

**SOURCE**

**ADVECTIVE MOBILITY**

**REACTION**

**SPFWEIGHT**

.prespfファイルのもう一つの特徴は、これらのキーワードに対応するテンソルその他の情報を記述する際に、以下の要領でストリングを作成することである。

” KEY WORD 定義すべき表現の属性 1 : 定義すべき表現の属性 2 : (必要数継続...) :  
関数形, 関数に含まれるargumentのリスト”

また、特に頻出する濃度及び質量はそれぞれ[.]及びm[.]によって認識され、括弧内には通常、同位体名称と移行形態あるいは瞬時平衡グループの名称が記入される。従って、例えばU233の溶存イオン濃度をionsで総称される瞬時平衡グループの全濃度で表現する場合、

**STATE DEPENDENCE** Uranium.233 : dissolved ions : x/RdU, x=[Uranium.233, ions]

というSTRINGを作成することとなる（但し、RdUは別途定数 (CONSTANT) として定義されているものとする）。

さて、これらの基本的な規則の下に、以下、各キーワード毎に入力の具体的な方法を述べることとする。

## **DECAY CHAIN**

このキーワードは、各崩壊連鎖を元素名.質量数で表現される同位体を単位として構成するものである。例えば、Am241から始まる系列は次の様に定義される。

**DECAY CHAIN** Americium.241 > Am241lambda > Neptunium.237 > Np237lambda > Uranium.233 > U233lambda > ;

ここで、Am241lambda等はそれぞれ別途定義される崩壊定数を意味し、また、行末はU233の娘は計算対象ではないことを意味している（対象とする必要があれば、勿論、継続して記入すれば良い）。複数崩壊系列を取り扱う場合には、単純に、上と同様の文を他の3つの系列についても記入すれば良い。なお、ユーザーが、上述の規則（元素名.質量数）に従って同位体名を定義した場合、自動的に各元素に帰属する同位体がどれとどれであるかが認識され、その場合の元素名は同位体名称の前半部分と一致する。

## **CHEMICAL STATE**

このキーワードは、個々の移行形態を定義するものである。例えば、

**CHEMICAL STATE** dissolved ions;

## **COLLECTED STATE**

このキーワードは、上で定義された各移行形態のうちどれとどれとが「速い反応」のみによって対応づけられている瞬時平衡グループかを指定するものである。つまり例えば、

**COLLECTED STATE** ions : dissolved ions, sorbed ions;

は、dissolved ionsとsorbed ionsとをまとめてionsという名称の瞬時平衡グループを定義することを意味している。

## **STATE DEPENDENCE**

このキーワードは、一つの瞬時平衡グループに属する各移行形態の濃度が、瞬時平衡グループの全濃度によってどの様に表現されるかを同位体毎に指定するものである。例えば、前出の

**STATE DEPENDENCE** Uranium.233 : dissolved ions : x/RdU, x=[Uranium.233, ions]

は、U233の溶存イオン濃度についての定義例である。ここで、定数RdUは同一元素の同位体では共有であるため、変数xを指定する[.]内の質量数部分以外は各同位体に共通したものとなる。また、溶解度限界等の場合、上の関数形は元素濃度を含んだものとなる。

## **LAYER**

このキーワードは解析対象領域を2.に述べた小領域に分割して定義するとともに、各小領域のメッシュ数と差分のタイプとを指定するものである。例えば、

**LAYER** buffer : 10 : 0.5 : 1.5 : centre;

は、緩衝材として、位置0.5から1.5までの部分領域を考えこれを10個のメッシュに分割し、メッシュ内の代表濃度としては中央値をとることを意味している。差分のタイプとしては lower, centre (スペルに注意), 及び upper の3種類が可能でありそれぞれメッシュの上流側境界、中央、及び下流側境界を代表点として採ることに対応する。また、複数小領域を考える場合には、上と同様の文を任意数つけ加えれば良い。

## **POROSITY**

このキーワードは各小領域での空隙率を定義するものであり、例えば、

**POROSITY waste form : 0.33**

**POROSITY buffer : 0.33**

という様にかかれる。この例では空隙率は定数であるが、STATE DEPENDENCE と同様にあるarguments の関数として表現することも可能である。また、特に複数の小領域での空隙率の数値あるいはより一般に関数形が等しい場合には、

**POROSITY wasteform, buffer : 0.33**

という表記法も許容される。

## **VOLUME**

このキーワードは、各小領域の容積がLAYERで定義された単純に幾何学的なものとは異なる場合（例えばガラス浸出に伴い、その体積が変化する場合）にのみ用いられる。表記法は、上の空隙率の場合と全く同じである。

## **AVERAGE MOBILITY**

このキーワードは、ある瞬時平衡グループの形態を採るある同位体の平均拡散係数値あるいはその関数形を指定するものである。但し、その関数形が元素毎に共通である場合には元素について一つの文を定義することによって該当する同位体全てにその定義が適用される。例えば、

**AVERAGE MOBILITY Americium : ions : waste form, buffer : d/RdAm**

は、アメリシウムionsという瞬時平衡グループの平均拡散係数が、固化体と緩衝材の小領域において共通にある定数の分数として定義されることを意味している。

## **ADVECTIVE MOBILITY**

このキーワードは、次に述べるSOURCEにおいてGROUNDWATERというキーワードが選択され、当該領域でミキシングセルの境界条件が適用された場合に、ある瞬時平衡グループ全体としての平均実効移流フラックスを、通常はゆるみ域について、定義するためのものである。そして、定義の方法は上の平均拡散係数と同一である。

## **SOURCE**

このキーワードは各小領域において、拡散と化学反応以外の質量の授受が生じる場合、これらを記述するためのものである。最も簡単な例は、

**SOURCE Americium : ions : decompressed zone : GROUNDWATER,**

であり、これはアメリシウムions という瞬時平衡グループの移行についてゆるみ域でミキシングセルの境界条件が適用されることを示している。また、この場合には、上の**ADVECTIVE MOBILITY** を定義する必要がある。もう一つの例は狭義のソースタームを与えるものであり、例えば以下の様なものが該当する。

**SOURCE Americium.241 : ions : waste form :**

$leach * \exp(-leach * t) * x1 * \exp(-l1 * t),$

$t = \text{TIME}, x1 = c_{\text{Americium241initial}}, l1 = \text{Am241lambda};$

この例は、放射性壊変と一定速度のガラス浸出により時間的にインベントリが減衰する場合のガラス固化体からの核種放出率を対応する常微分方程式の解として定義したものである。

## REACTION

このキーワードは、複数の瞬時平衡グループ間での速度論的な化学反応について、その速度式を定義するものである。例えば、

**REACTION Americium.241 : ions : precipitates :**

$-\text{MuAm}*(y-\text{CAm})*\text{hsmooth}(10*(\text{hsmooth}((y-\text{CAm}), \text{CAm}*1\text{e-}1))^*$

$\text{hsmooth}(x,\text{CAm}*1\text{e-}1)+(1.0-\text{hsmooth}((y-\text{CAm}), \text{CAm}*1\text{e-}1))*\text{hsmooth}(w,\text{CAm}*1\text{e-}1)),$

0.1),

$x=[\text{Americium.241}, \text{dissolved ions}], y=[\text{Americium}, \text{dissolved ions}],$

$w=[\text{Americium.241}, \text{precipitates}];$

は、Am241 がアメリシウム元素濃度についての一次の溶解・沈澱反応（飽和溶解度及び反応速度定数はそれぞれ定数CAm及びMuAmで与えられる）によって溶存イオン中の同位体存在比に従って瞬時平衡グループionsからprecipitatesへと転移するフラックスを定義している。ここで、hsmoothはHeavisideステップ関数を微分可能な程度に滑らかにしたものであり、CAm\*1e-1はその「滑らかさ」を管理するパラメータである。

## SPFWEIGHT

このキーワードは、SPADEが計算を実行する際の誤差管理における各未知数の「重み」つまり.spfファイル中のWEIGHTを設定するためのものである。以下はその例である。

**SPFWEIGHT Americium.241 : ions : 1.0/(abs(x)+1.e-8), x=m[Americium.241,ions];**

付録-1は、以上の諸規則に従い、次節で述べる例題について作成した.prespfファイルである。これに基づき自動的に作成された.spfファイル（19ページ）と比較してみれば、.prespfファイル（5ページ）を用いることが、複数崩壊連鎖と複数移行形態を含む問題を定義する煩雑さを大幅に軽減するものであることが明らかである。

なお、.prespfファイルにより問題が定義されると、このプリプロセッシングユニットは自動的に以下のスカラーあるいはベクトル変数を定義する。

- $c_{ij}$ , 瞬時平衡グループ  $j$  の同位体  $i$  の濃度
- $s_{ij}^*$ , 移行形態  $j^*$  の同位体  $i$  の濃度
- $C_{ij}$ , 瞬時平衡グループ  $j$  の元素  $i$  の濃度
- $S_{ij}^*$ , 移行形態  $j^*$  の元素  $i$  の濃度
- $m_{ij}$ , 瞬時平衡グループ  $j$  の同位体  $i$  の質量
- $n_{ij}^*$ , 移行形態  $j^*$  の同位体  $i$  の質量
- $M_{ij}$ , 瞬時平衡グループ  $j$  の元素  $i$  の質量
- $N_{ij}^*$ , 移行形態  $j^*$  の元素  $i$  の質量
- 空隙率
- 容積
- 各セルの断面積
- セル代表点の位置
- $\alpha_{ij}$ , 瞬時平衡グループ  $j$  の同位体  $i$  の平均拡散係数
- $J_{ij}$ , ソーステンソル
- $T_{ij}$ , 物質移動テンソル
- $R_{ij}$ , 化学反応テンソル

注： $j$  および  $j^*$  は共に任意の移行形態を指す。 $j$  と  $j^*$  は異なるグループである。

また、同様に以下の補足的な出力も定義される。

- $peak\_flux\_i$ , 同位体  $i$  のニアフィールドからの放出率の最大値
- $farfield\_i$ , 同位体  $i$  のニアフィールド外部に存在する質量
- $peak\_farfield\_i$ , 同位体  $i$  のニアフィールド外部に存在する質量のピーク値

これらの多数の変数の定義については、.keyファイルと呼ばれるものが自動的に作成され、これが、計算に含まれる種々の量がSPADE本体及び.prespfファイルにおいてどの様に表記されているかを示す辞書となる。

### 3.3 例題演習



### 3.3.1 概要及び.prespfファイル作成のために必要となる情報

ここでは、前節に述べた.prespfファイルを用いて、各3メンバーを有する4崩壊系列（合計12同位体、5元素）の瞬時線形吸着と速度論的な溶解・沈澱反応を含めた例題について計算を行うこととした。ここでは、まず、前出のキーワードに関連する情報を記載することを通じて例題の条件設定をまとめることとする。

#### DECAY CHAIN

表 3.3.1-1の各3メンバーを有する4崩壊系列（計12同位体、5元素）を解析対象とする。なお、初期インベントリーは表 3.3.1-2の通りである（表中の数字は固化体1体当たりに対応するものであり、円筒座標の軸方向単位長さを対象とする実際の計算では、廃棄体一体当たりの実効高さ1.95メートルで除した数値を用いる）。

#### CHEMICAL STATE及びCOLLECTED STATE

移行形態及び瞬時平衡グループとしては、それぞれ3種類及び2種類を考慮することとし、また、これらの間の対応は表 3.3.1-3に示す通りとする。

表 3.3.1-1 解析対象とする崩壊系列及び同位体

	対応する同位体と崩壊系列
4n	Pu.240 > U.236 > Th.232
4n+1	Am.241 > Np.237 > U.233
4n+2	U.238 > U.234 > Th.230
4n+3	Am.243 > Pu.239 > U.235

表 3.3.1-2 各同位体の初期インベントリ

同位体	初期インベントリ (mols/waste)
Am.243	0.358
Am.241	0.230
Pu.240	0.157
Pu.239	0.223
Np.237	3.527
U.238	8.15
U.236	5.47 e-2
U.235	8.85 e-2
U.234	1.00 e-3
U.233	1.06 e-3
Th.232	5.39 e-6
Th.230	2.37 e-5

表 3.3.1-3 移行形態及び瞬時平衡グループ

移行形態	瞬時平衡グループ
溶存イオン	ions
吸着種	ions
沈澱	precipitates

## STATE DEPENDENCE

瞬時平衡グループionsについては、これに含まれる溶存イオンと吸着種の濃度とがそれぞれ以下の関係式によりionsの全濃度により表現されるものとする。

$$[\text{dissolved ion}] = \frac{1}{1 + \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon} \rho K_D} [\text{ions}],$$

(9)

$$[\text{sorbed ion}] = \frac{\frac{1-\varepsilon}{\varepsilon} \rho K_D}{1 + \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon} \rho K_D} [\text{ions}],$$

但し、 $\rho$ 及び $\varepsilon$ はそれぞれ当該領域の密度と空隙率とし、 $K_D$ は表 3.3.1-4で与えられるものとする。

表 3.3.1-4 各元素の分配係数

	$K_D$ (m <sup>3</sup> /kg)
Am	10.0
Pu	10.0
Np	0.1
U	0.1
Th	0.1

## LAYER, POROSITY及びVOLUME

解析対象領域としては、ガラス固化体、オーバーパック、緩衝材及びゆるみ域の4つを考慮することとし、それぞれを以下の様に定義する。

表3.3.1-5 各小領域の形状及び特性

	内半径(m)	外半径(m)	容積	密度(kg/m <sup>3</sup> )	空隙率
ガラス固化体	0.0	0.2	一定	2.7 e3	0.33
オーバーパック	0.2	0.5	一定	2.7 e3	0.33
緩衝材	0.5	1.5	一定	2.7 e3	0.33
ゆるみ域	1.5	3.0	一定	2.7 e3	0.33

## AVERAGE MOBILITY及びADVECTIVE MOBILITY

唯一の可動な形態である溶存イオンを含む瞬時平衡グループionsの平均分子拡散係数及び平均移流流束は、上述したSTATE DEPENDENCEに基づきそれぞれ以下の様に与えられる。

$$(10) \quad \text{平均拡散係数} = \frac{1}{1 + \frac{1-\epsilon}{\epsilon} \rho K_D} D,$$

$$(11) \quad \text{平均移流流束} = \frac{1}{1 + \frac{1-\epsilon}{\epsilon} \rho K_D} Q.$$

但し、溶存イオンの拡散係数 $D=2.84 \text{ e-2 (m}^2\text{/yr)}$  及びゆるみ域内地下水流束 $Q=1 \text{ (m}^3\text{/yr)}$  とする。

## SOURCE

ガラス固化体領域において、以下の一定浸出率のガラス溶解にともなう核種放出が生じるものとする。

$$(12) \quad (\text{ガラスからの核種放出率}) = \kappa e^{-(\kappa+\lambda)t} m_i^0$$

但し、 $\lambda_i$  及び  $m_i^0$  はそれぞれ同位体  $i$  の崩壊定数及び初期インベントリとする。また、ガラス浸出率 (fractional rate, 1/yr) は、 $1.0 \times 10^{-4}$  とする。

なおこの形式は上記の仮定の下での核種の質量保存式

$$\frac{dm_i}{dt} = -\kappa m_i - \lambda_i m_i$$

の解に対応している。

## REACTION

速度論的な反応としては溶解・沈澱反応を考えると、この反応に伴う瞬時平衡グループ ions と瞬時平衡グループ precipitates との間の核種の交換フラックスを、前者から後者の向きを正として、以下の様に定義する。

$$(13) \quad \begin{aligned} & (\text{溶解・沈澱反応フラックス}) \\ = & -\mu \frac{[\text{isotope, dissolved ion}]}{[\text{element, dissolved ion}]} ([\text{element, dissolved ion}] - c^*) H([\text{element, dissolved ion}] - c^*) \\ & + \mu \frac{[\text{isotope, precipitates}]}{[\text{element, precipitates}]} ([\text{element, dissolved ion}] - c^*) \\ & \{1 - H([\text{element, dissolved ion}] - c^*)\} H([\text{isotope, precipitates}]) \end{aligned}$$

ここで、反応が正方向の場合と逆方向の場合とで使用する同位体比が異なることに留意されたい。これら液相及び固相の同位体比は瞬時平衡の仮定の下では常に等しいが、反応が速度論的である場合には必ずしも等しくはならない。 $c^*$  は溶解度であり、各元素についてそれぞれ表 3.3.1-6に示す数値を用いることとする。また、 $\mu$  は反応速度定数であり、0.1 (1/yr) の場合と10の場合の2ケースを考えるものとする。

表 3.3.1-6 各元素の溶解度

	溶解度(mols/m <sup>3</sup> )
Am	6.3 e-5
Pu	2.5 e-8
Np	2.0 e-9
U	3.9 e-7
Th	2.5 e-7

### 3.3.2 計算結果

前節にまとめた例題についての条件の下で、2ケース（溶解・沈澱反応が速い場合と遅い場合）の計算を実施した。計算結果として、Am, Pu, Np, U, 及びThのニアフィールドからの核種放出率の経時変化を図3.3.2-1から-10に示す。Npの放出率は、ガラスの浸出の影響が継続している初期には溶解・沈澱反応が遅い ( $\mu=0.1$ ) 場合にはゆるみ域内の濃度が溶解度に達すると仮定した場合の放出率（図中の点線）よりもはるかに大きなものとなっているが、その後の定常状態では溶解限度の場合に近い挙動を示している。また、Uの場合は主としてU.238の寄与により溶解・沈澱反応が遅い ( $\mu=0.1$ ) 場合は勿論、速い ( $\mu=10$ ) 場合でもゆるみ域内の濃度が溶解度に達すると仮定した場合の放出率を上回る最大放出率が算出されている。また、Uの放出率は、全Uとしての放出率が定常に到達した後にも各同位体毎に見れば存在比の変化を反映した非常に複雑な挙動を示している。

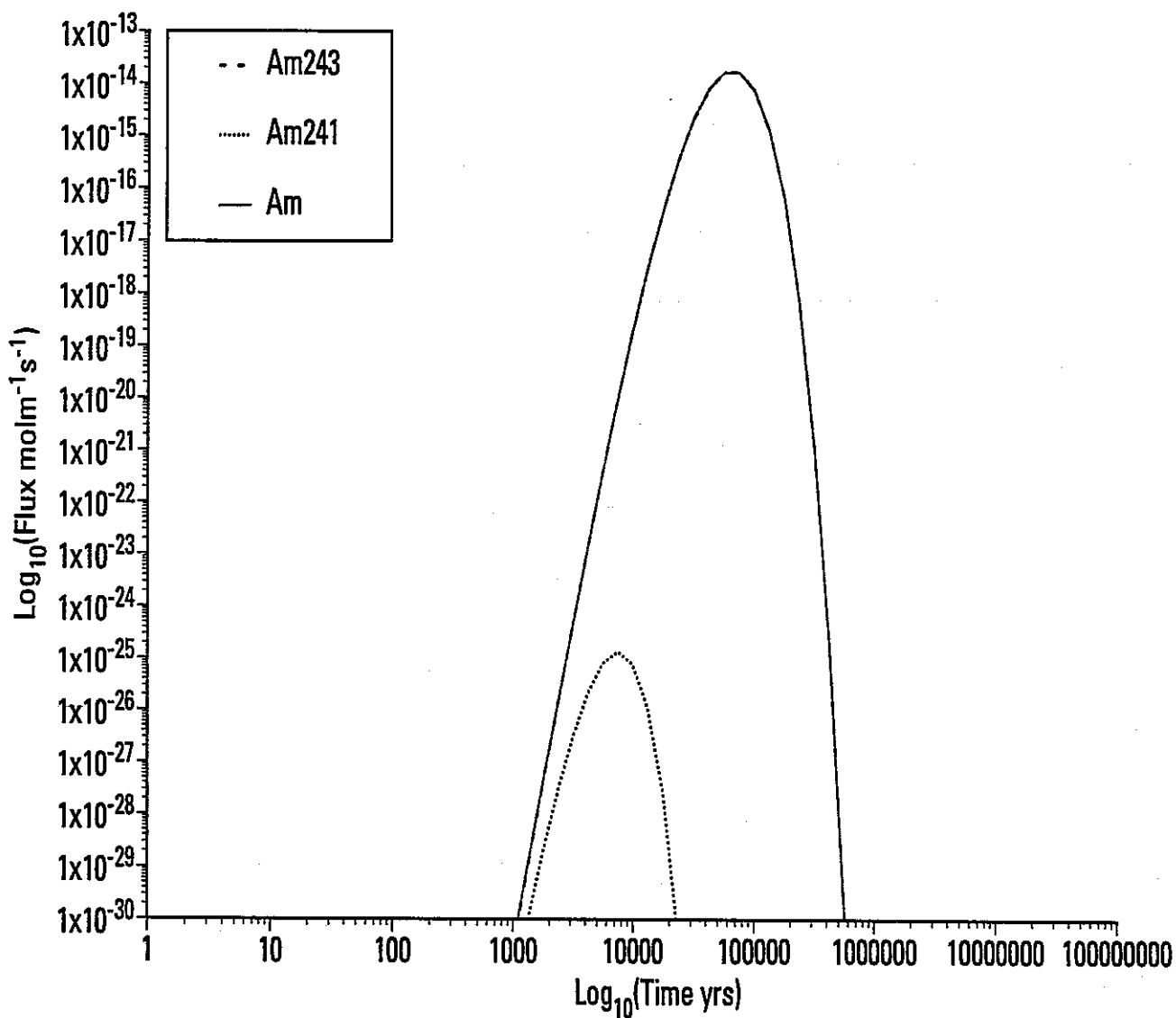


図3.3.2-1 ニアフィールドからの核種放出率 (Am,  $\mu=0.1$ )

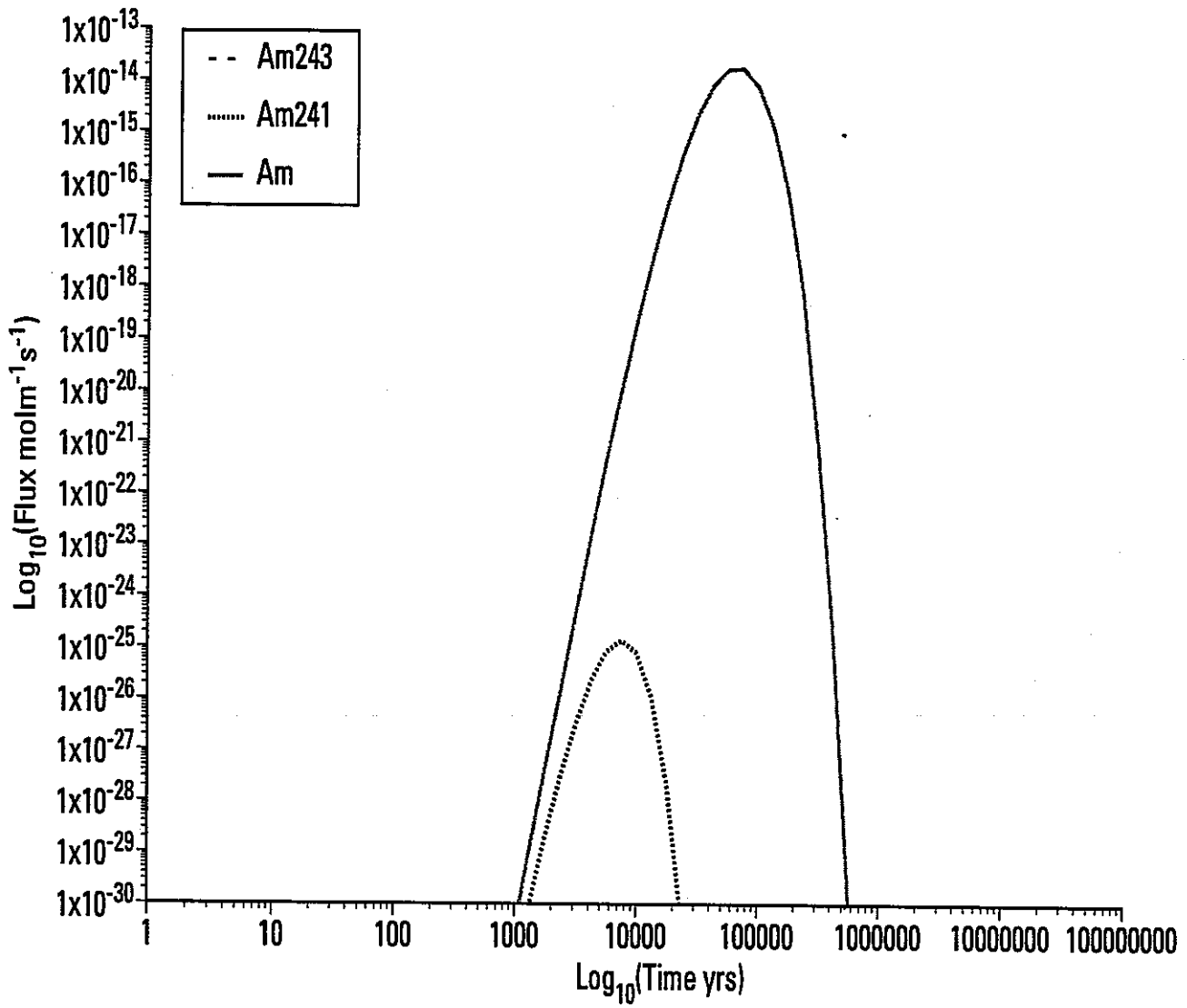


図3.3.2-2 ニアフィールドからの核種放出率 (Am,  $\mu=10$ )



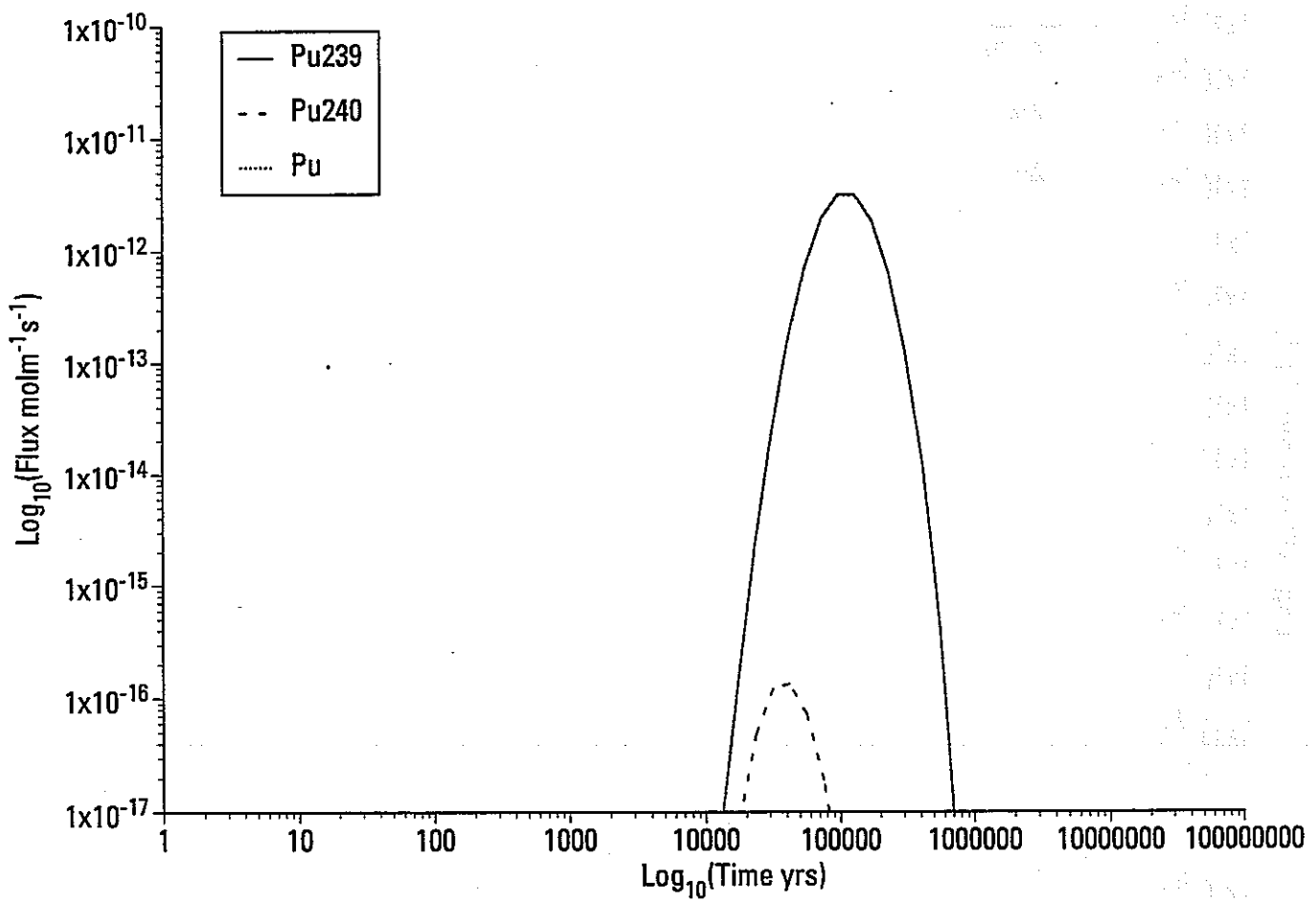


図3.3.2-3 ニアフィールドからの核種放出率 (Pu,  $\mu 0.1$ )

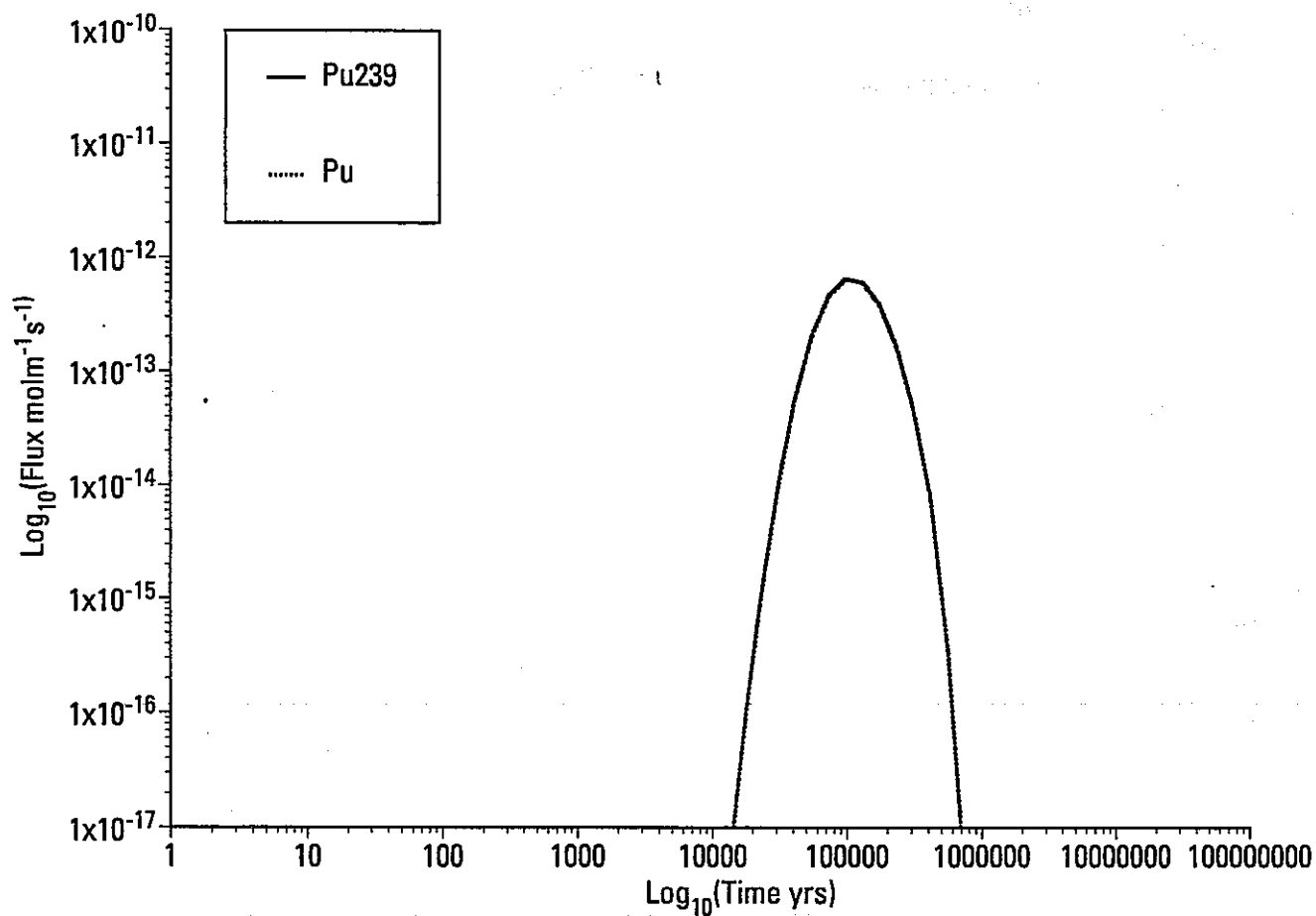


図3.3.2-4 ニアフィールドからの核種放出率 (Pu,  $\mu=10$ )

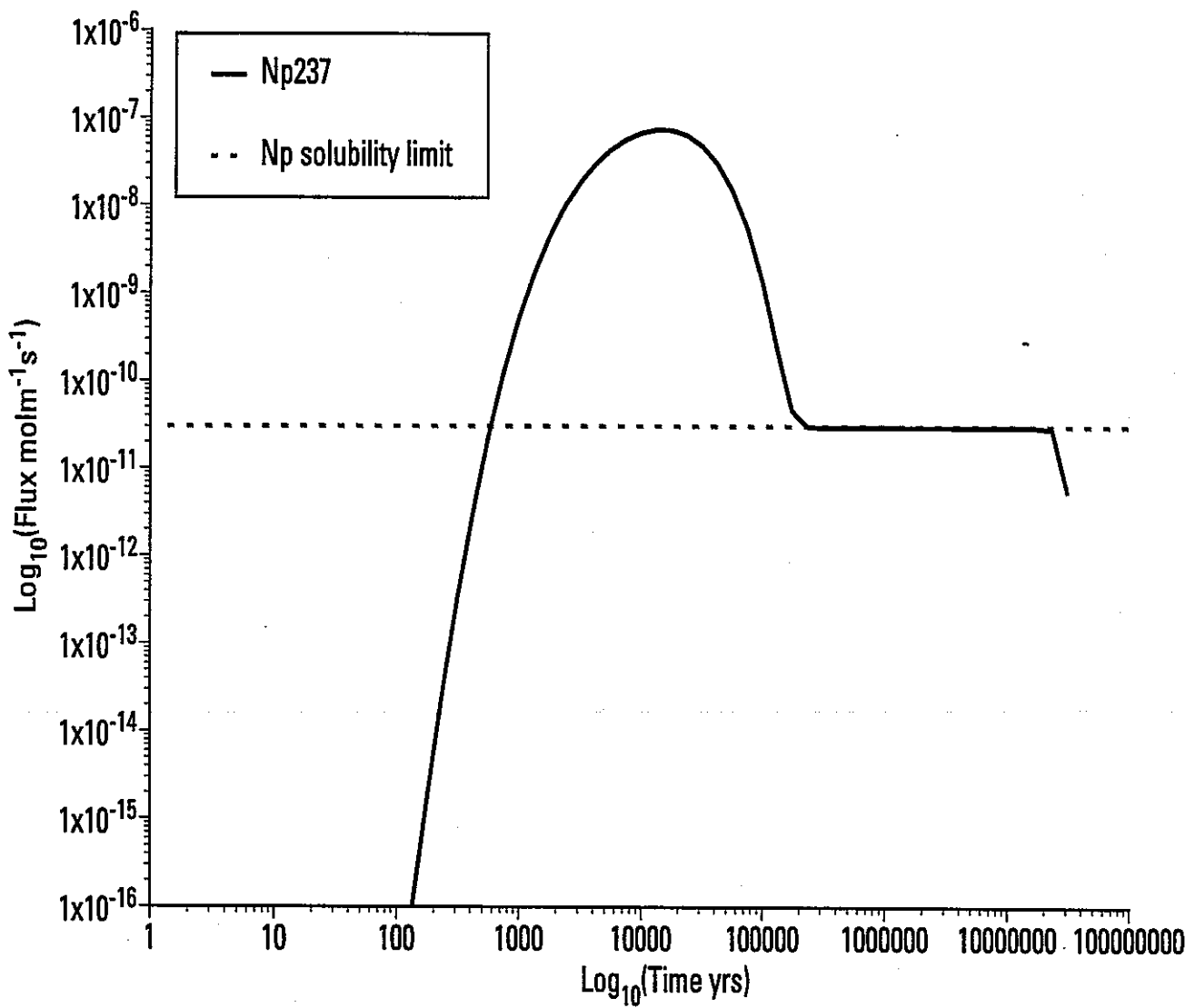


図3.3.2-5 ニアフィールドからの核種放出率 (Np,  $\mu=0.1$ )

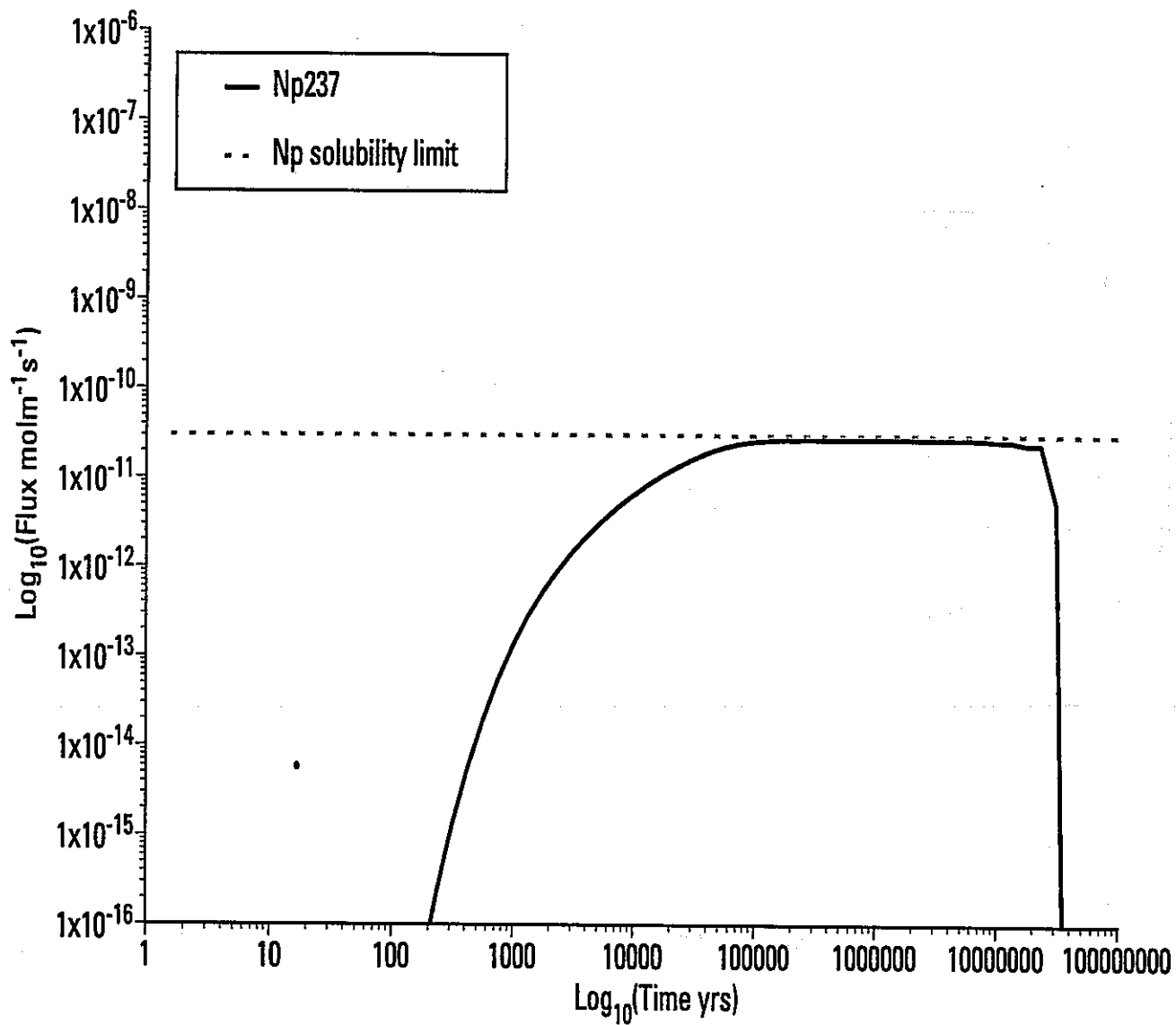


図3.3.2-6 ニアフィールドからの核種放出率 (Np,  $\mu=10$ )

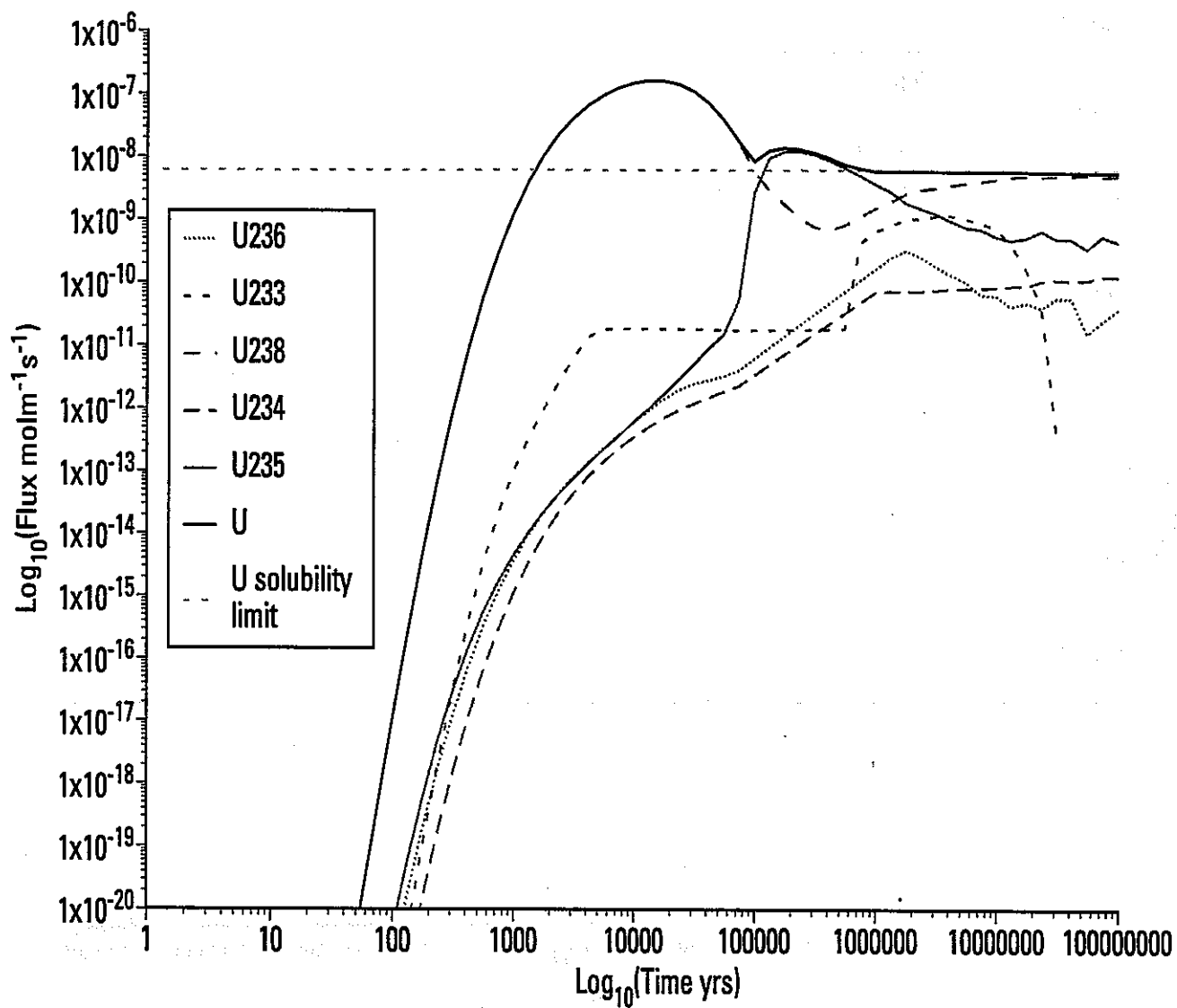


図3.3.2-7 人工バリアからの核種放出率 (U,  $\mu=0.1$ )

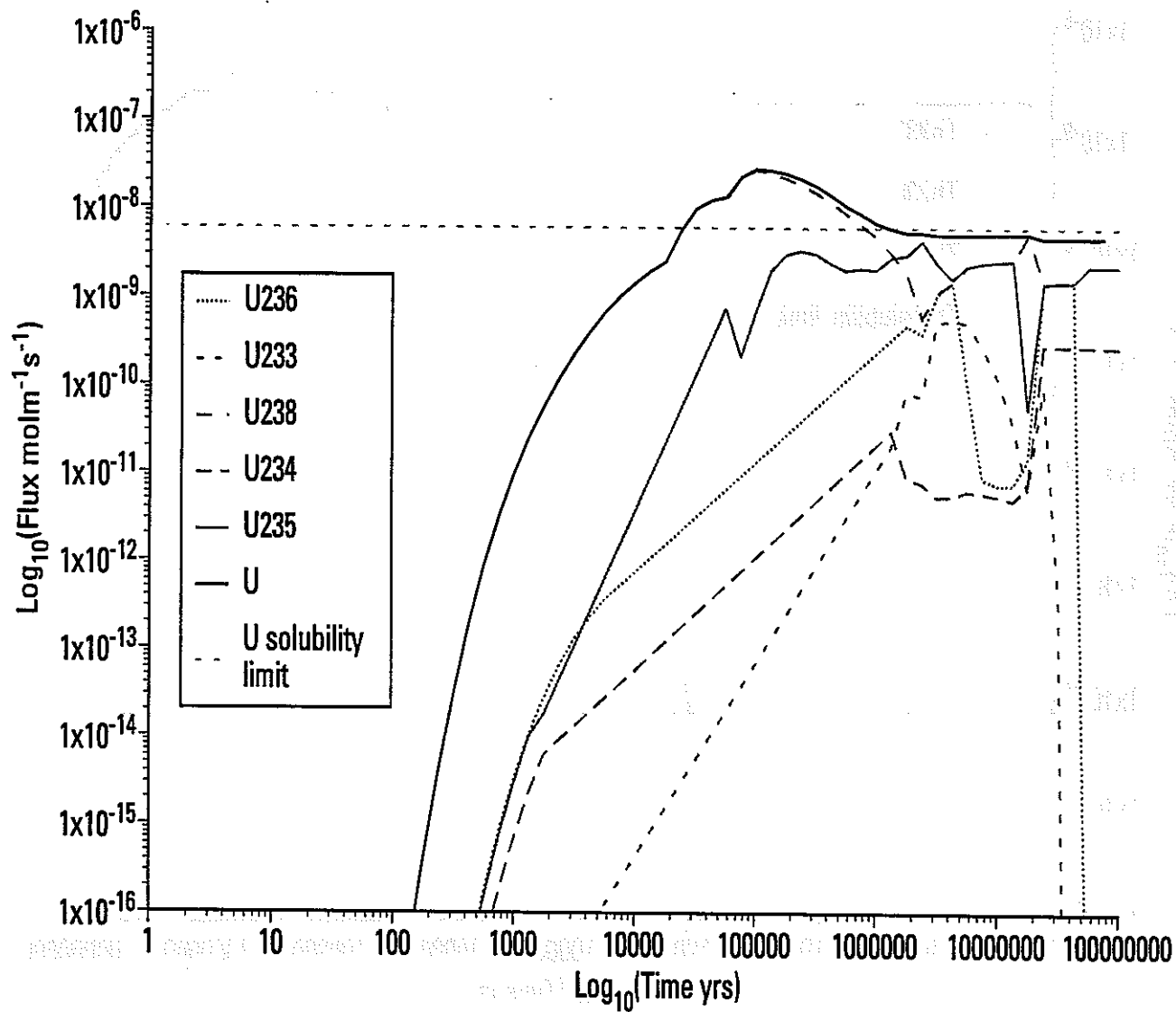


図3.3.2-8 ニアフィールドからの核種放出率 (U,  $\mu=10$ )

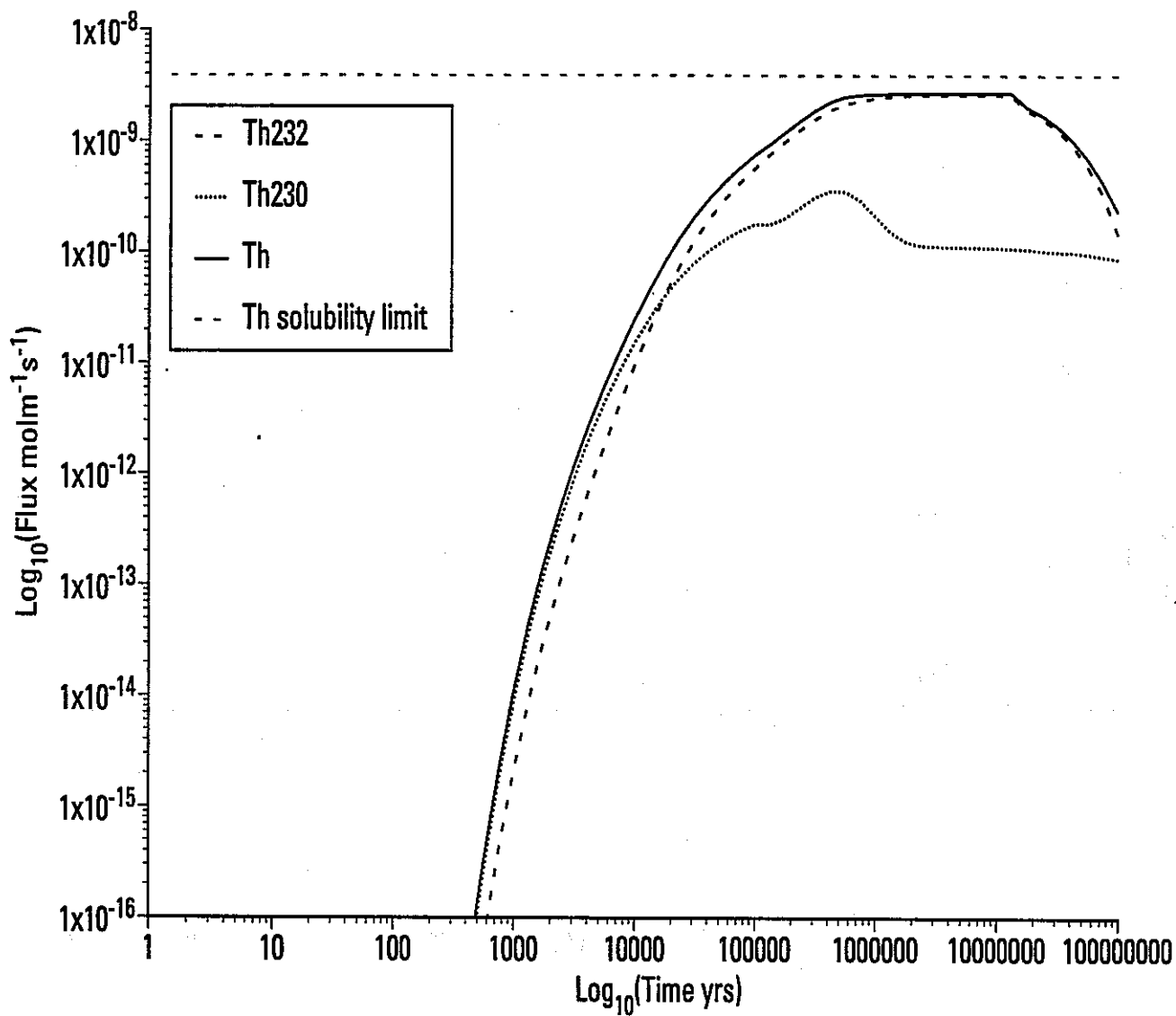


図3.3.2-9 ニアフィールドからの核種放出率 (Th,  $\mu=0.1$ )

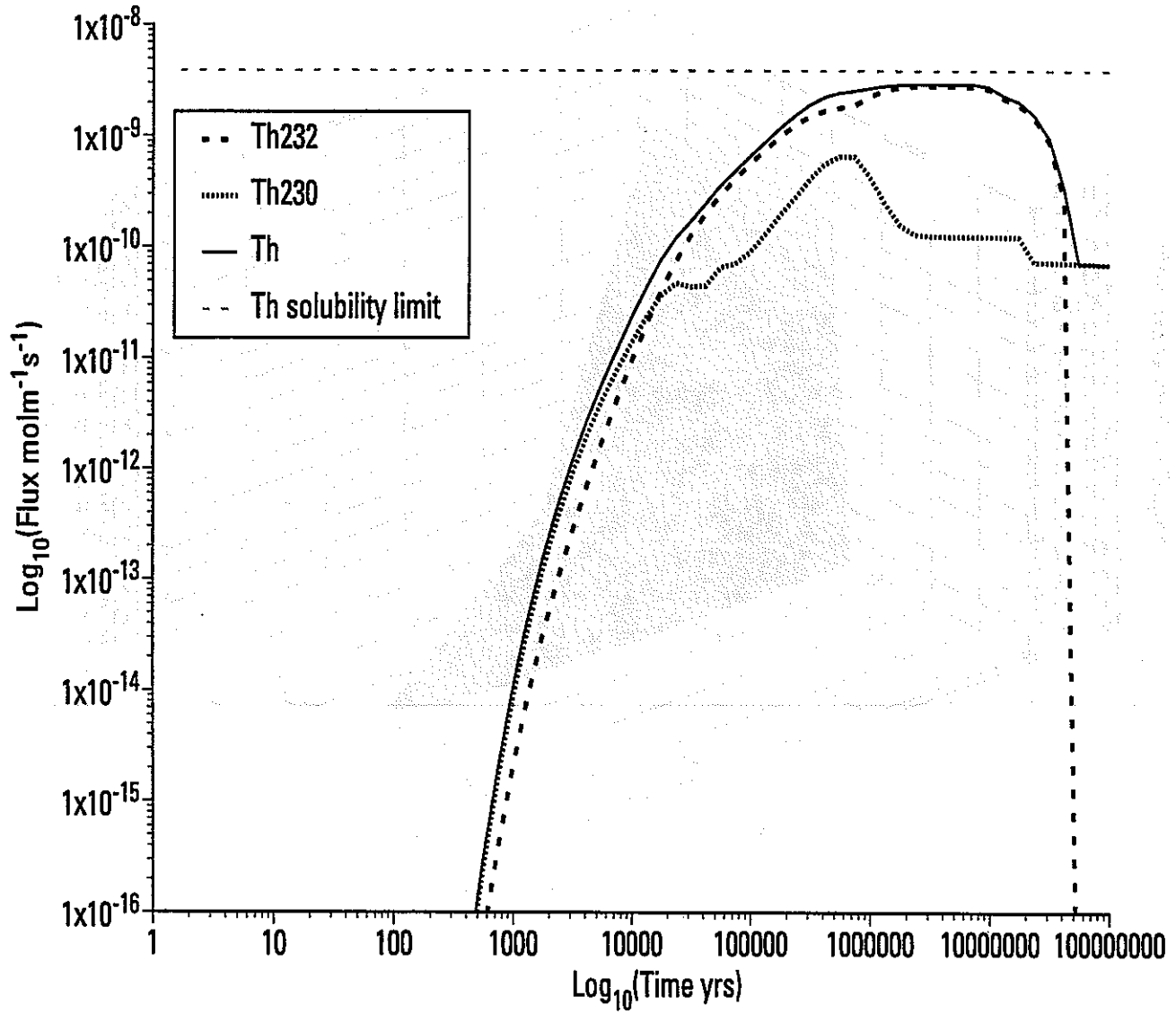


図3.3.2-10 ニアフィールドからの核種放出率 (Th,  $\mu=10$ )



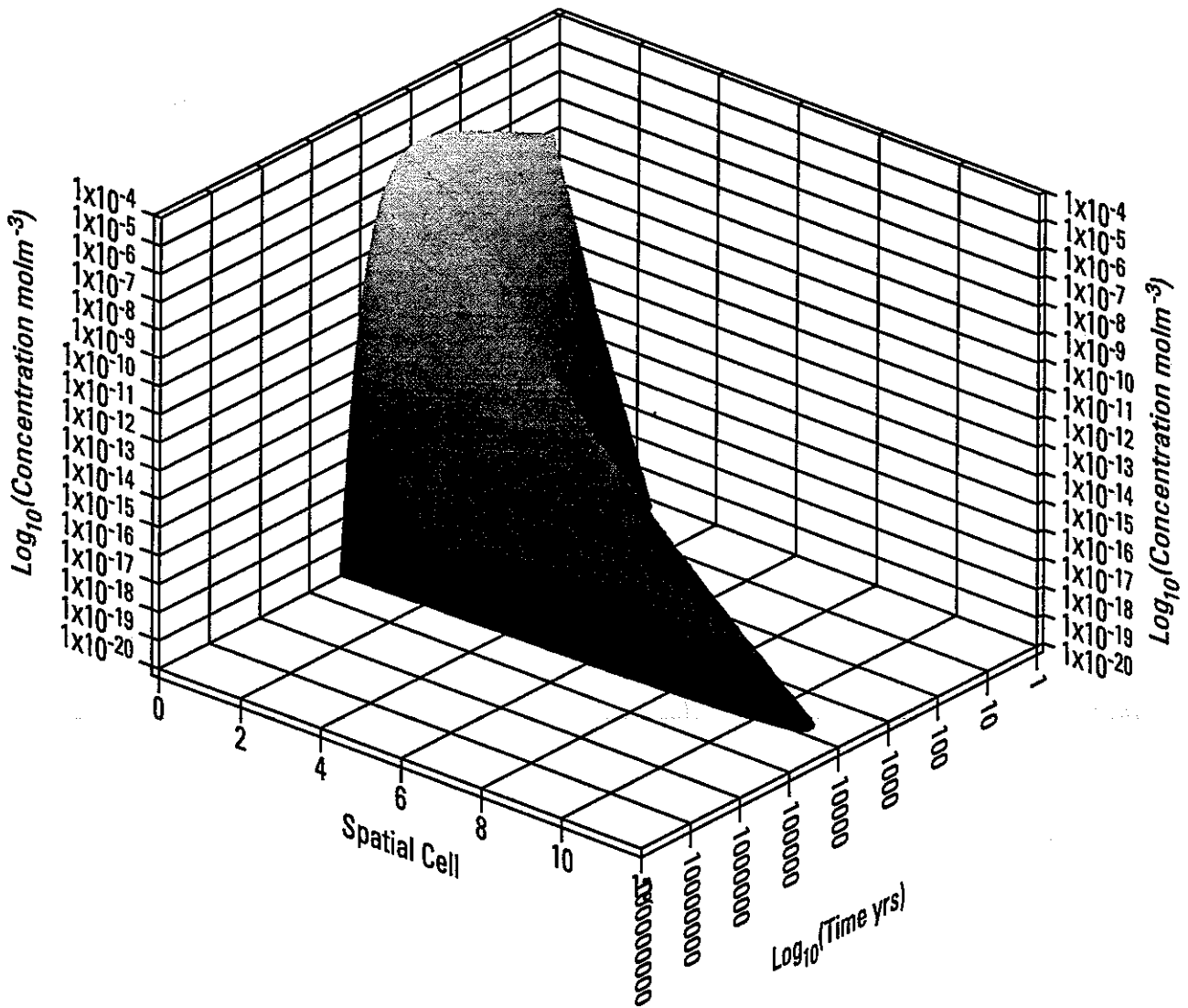


図3.3.2-11 人工バリア内の溶存イオン濃度分布 (Am241,  $\mu=0.1$ )

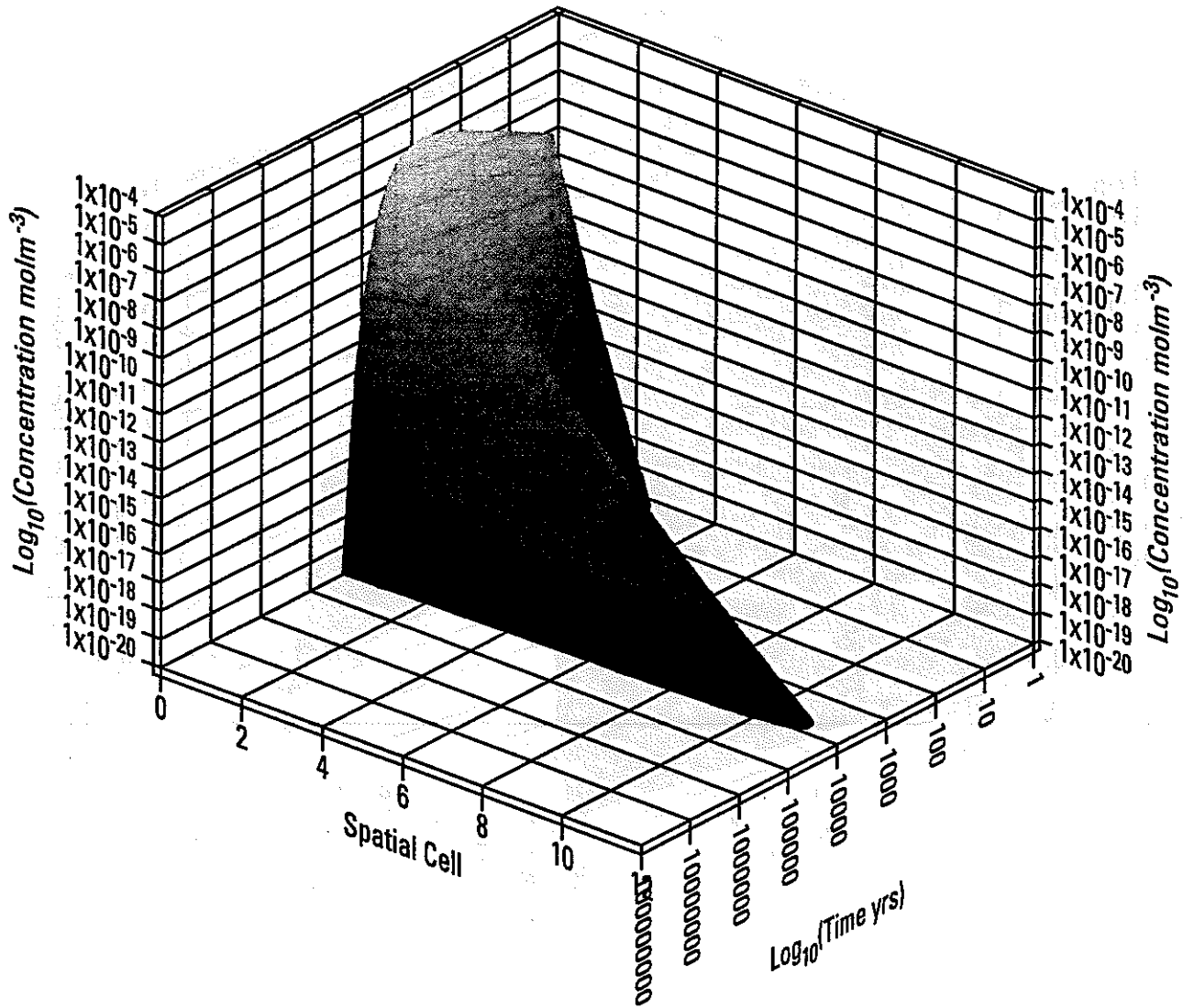


図3.3.2-1 2 人工バリア内の溶存イオン濃度分布 (Am241,  $\mu=10$ )

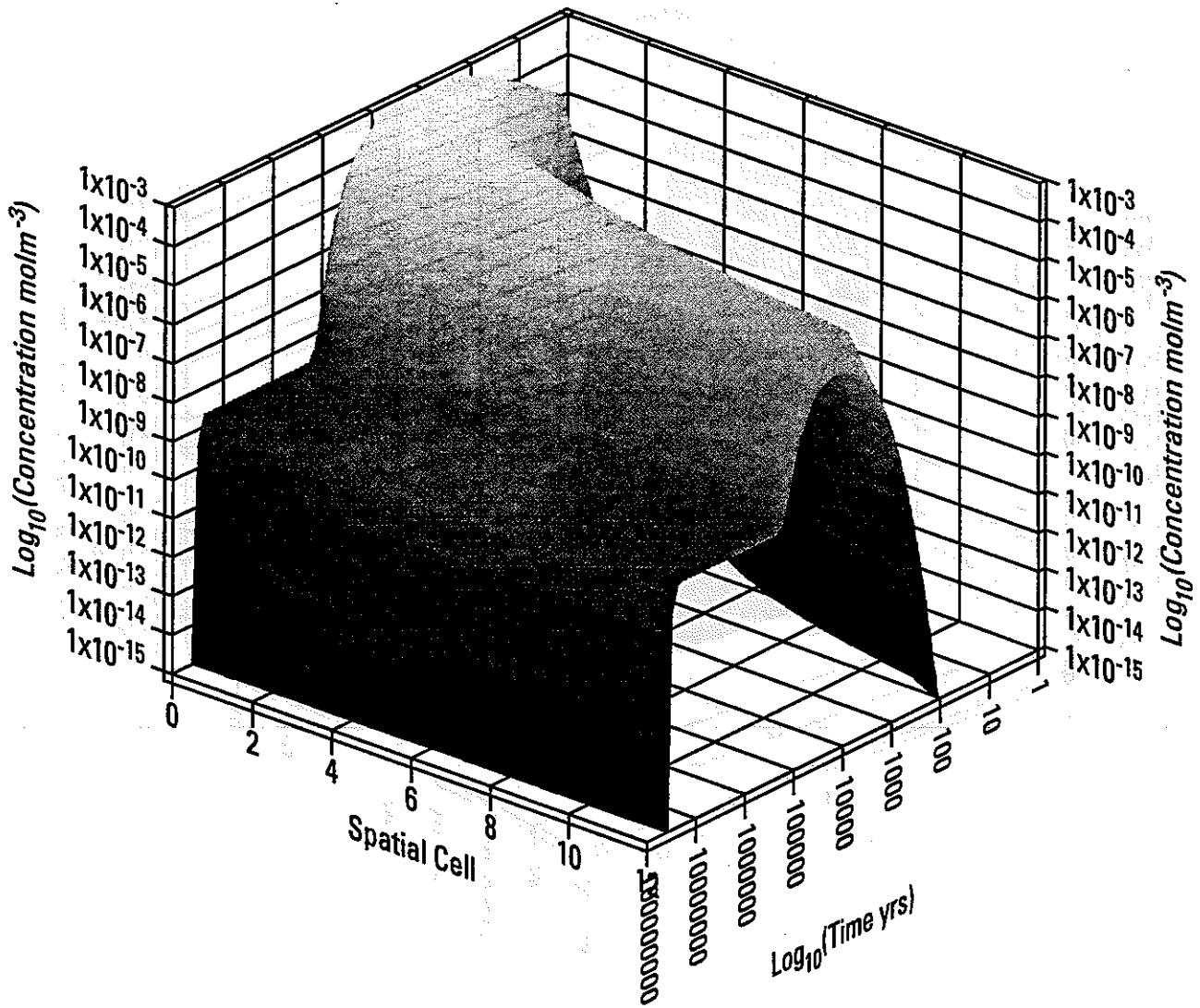


図3.3.2-13 人工バリア内の溶存イオン濃度分布 (Np237,  $\mu=0.1$ )

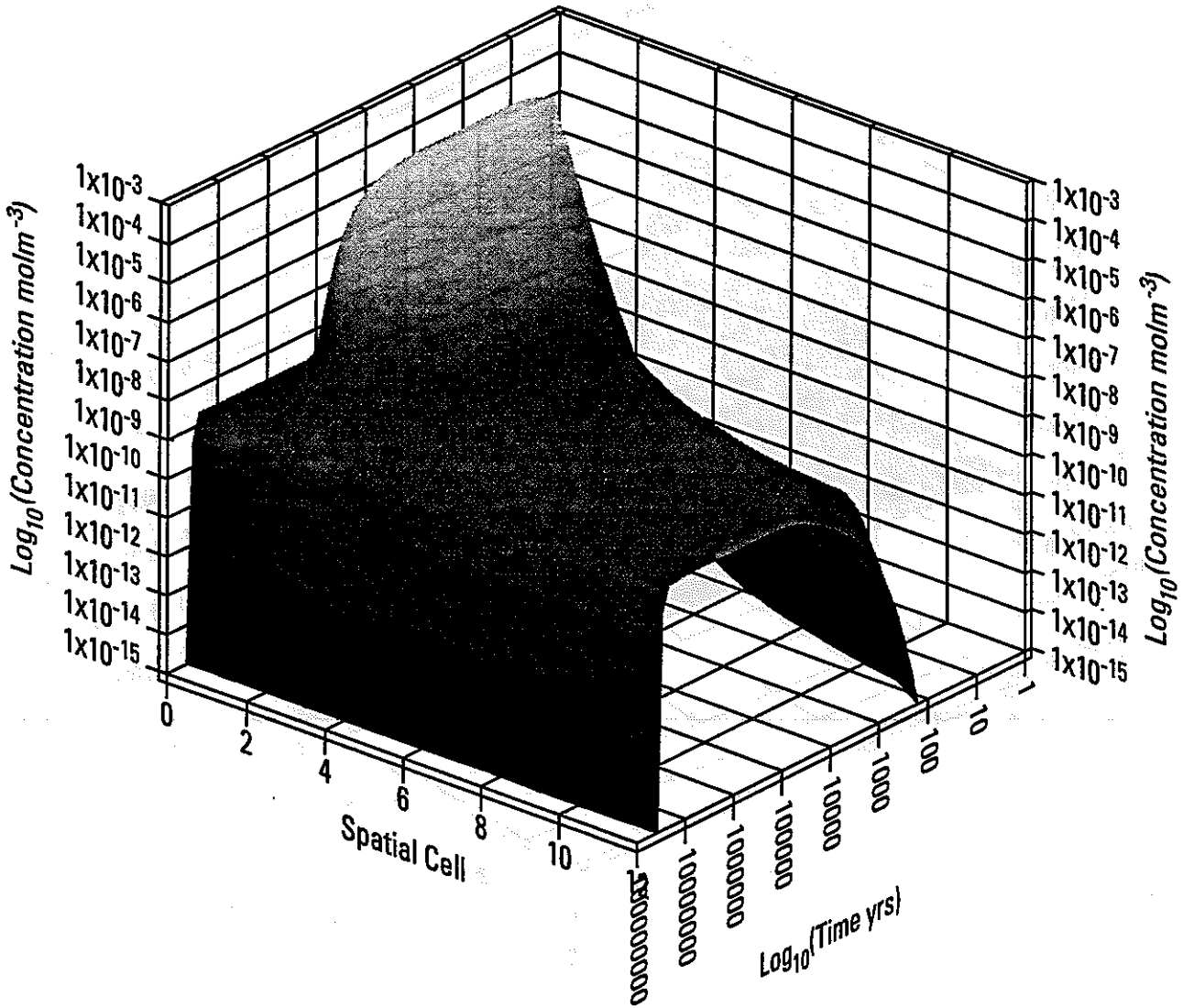


図3.3.2-14 人工バリア内の溶存イオン濃度分布 (Np237,  $\mu=10$ )

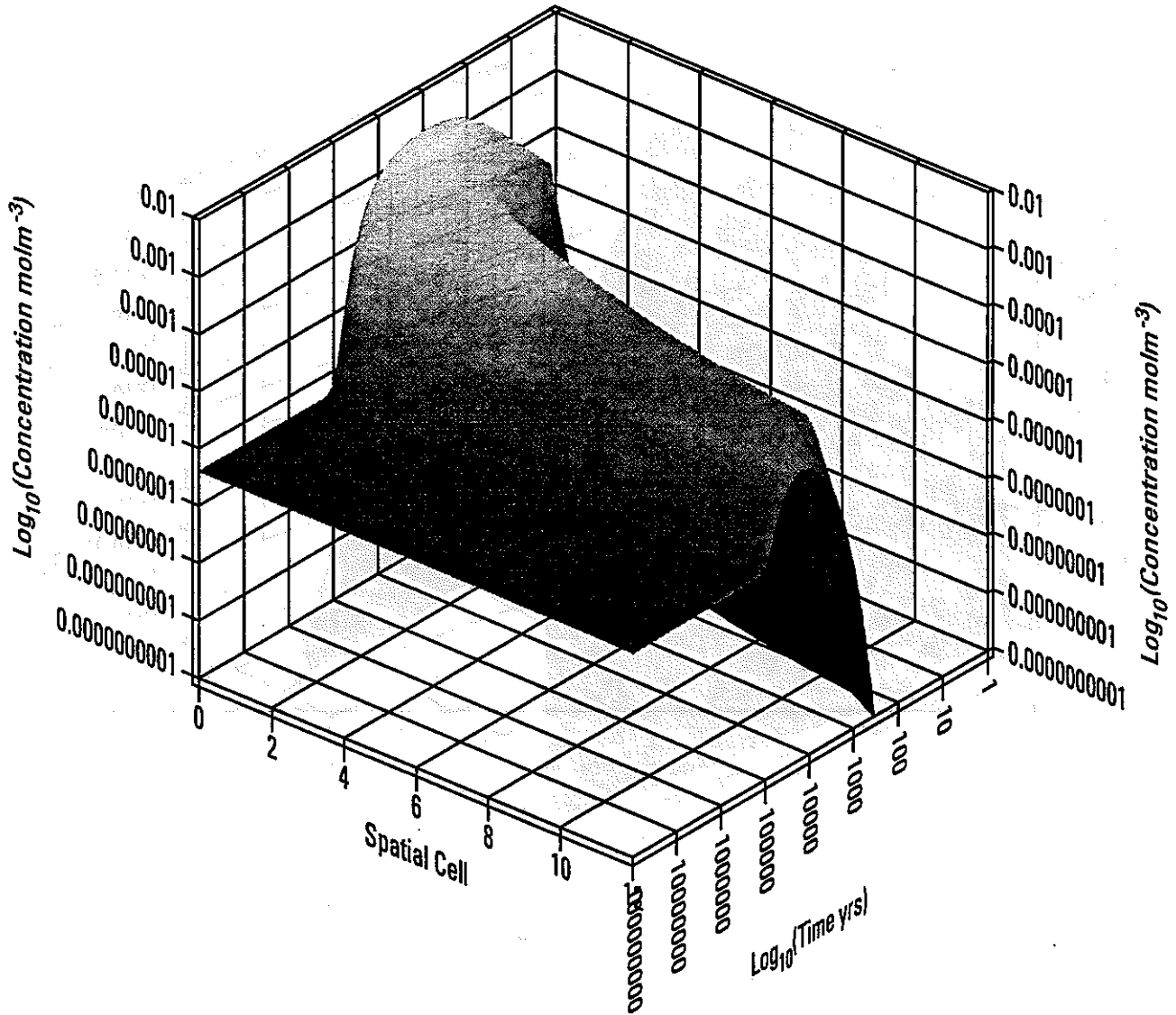


図3.3.2-15 人工バリア内の溶存イオン濃度分布 (全U,  $\mu=0.1$ )

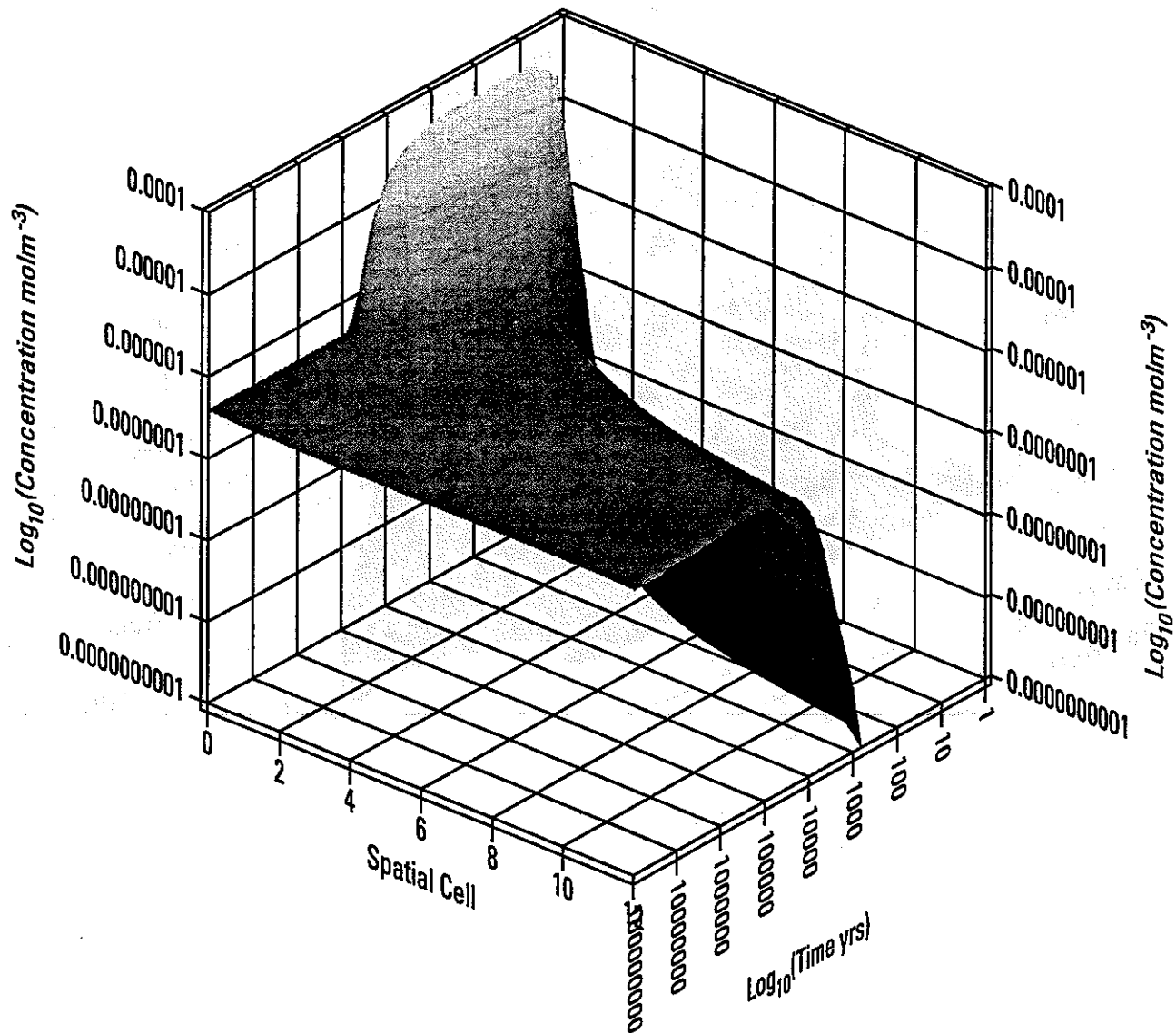


図3.3.2-16 人工バリア内の溶存イオン濃度分布 (全U,  $\mu=10$ )

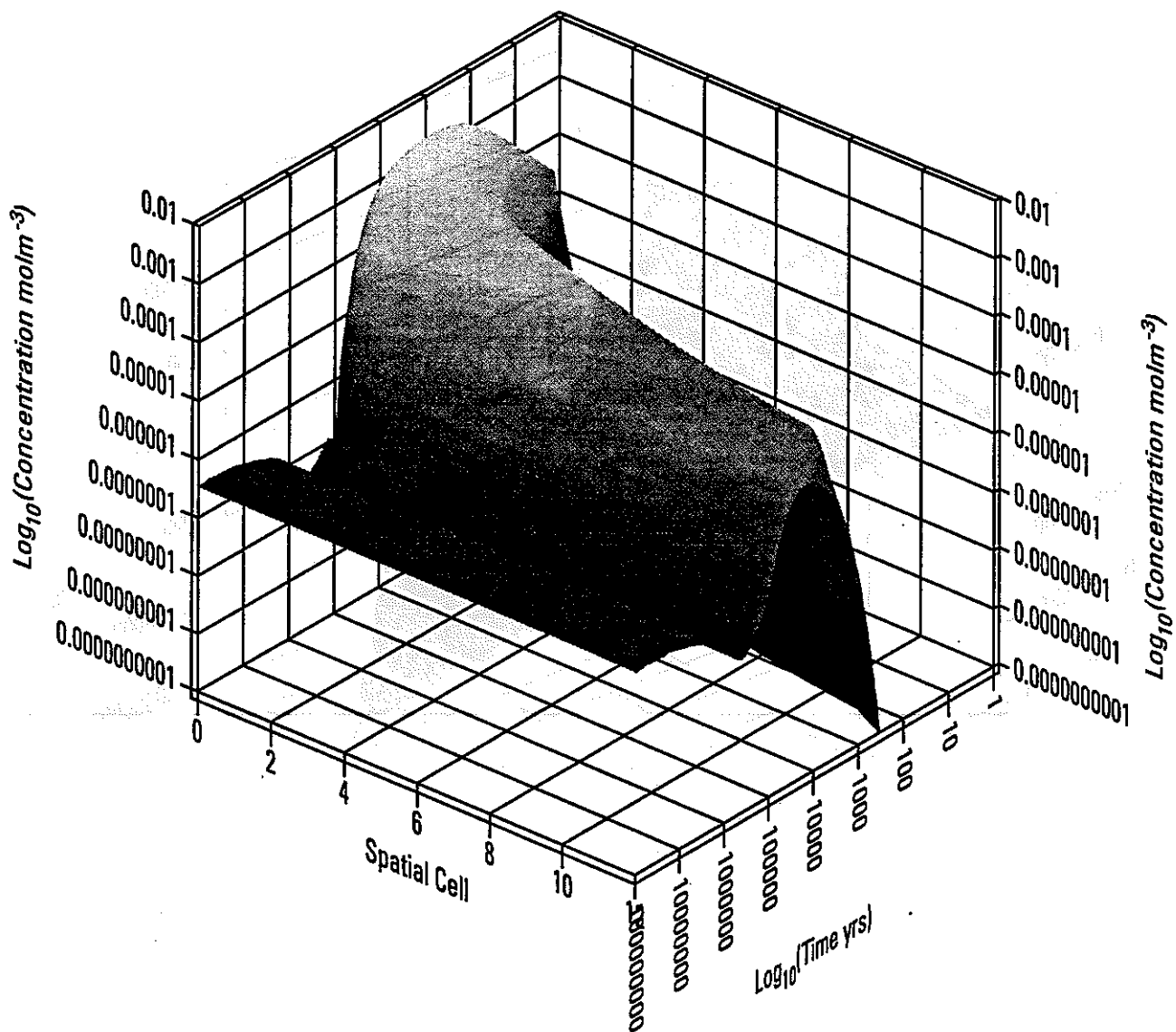


図3.3.2-17 人工バリア内の溶存イオン濃度分布 (U238,  $\mu=0.1$ )

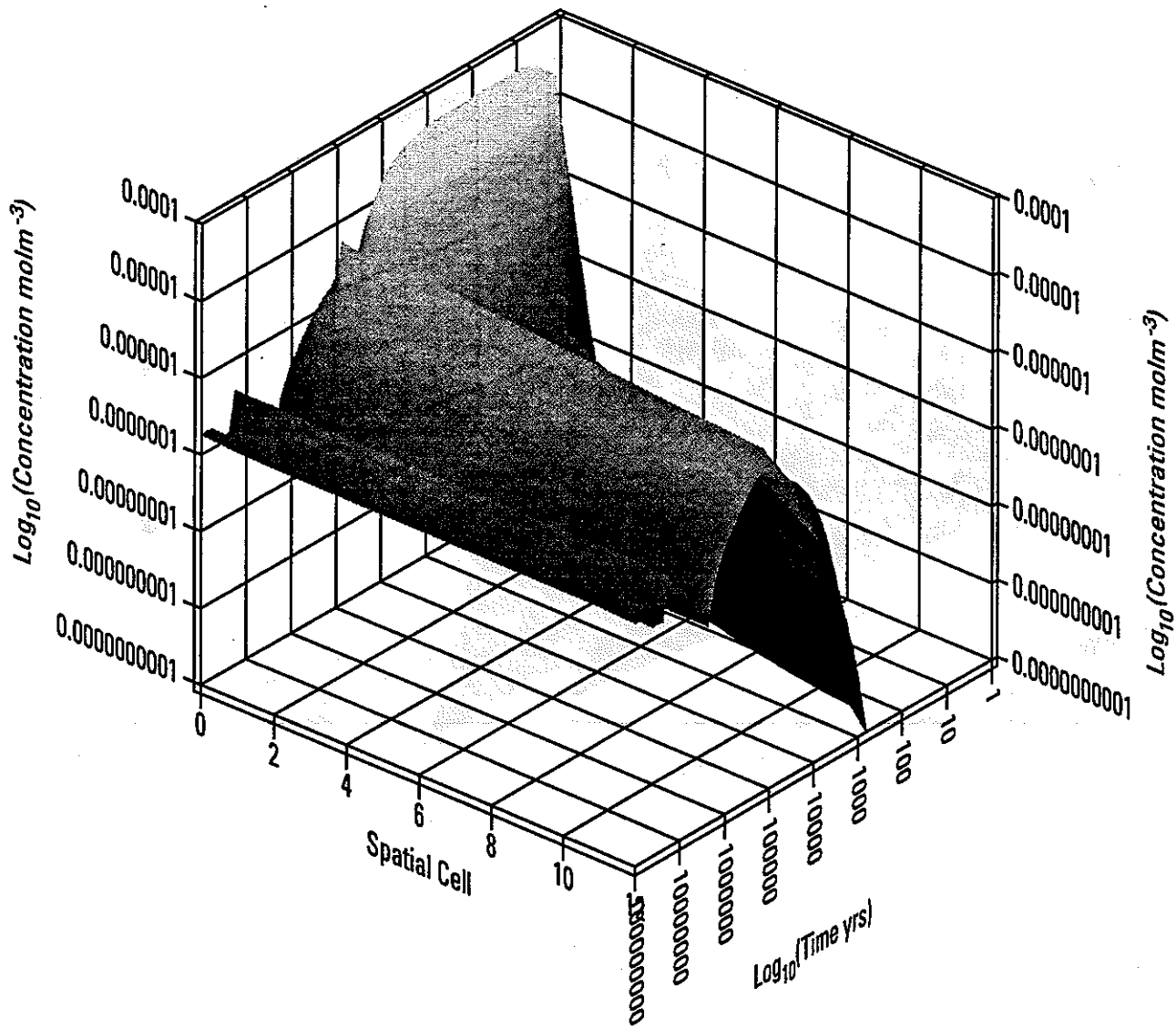


図3.3.2-18 人工バリア内の溶存イオン濃度分布 (U238,  $\mu=10$ )



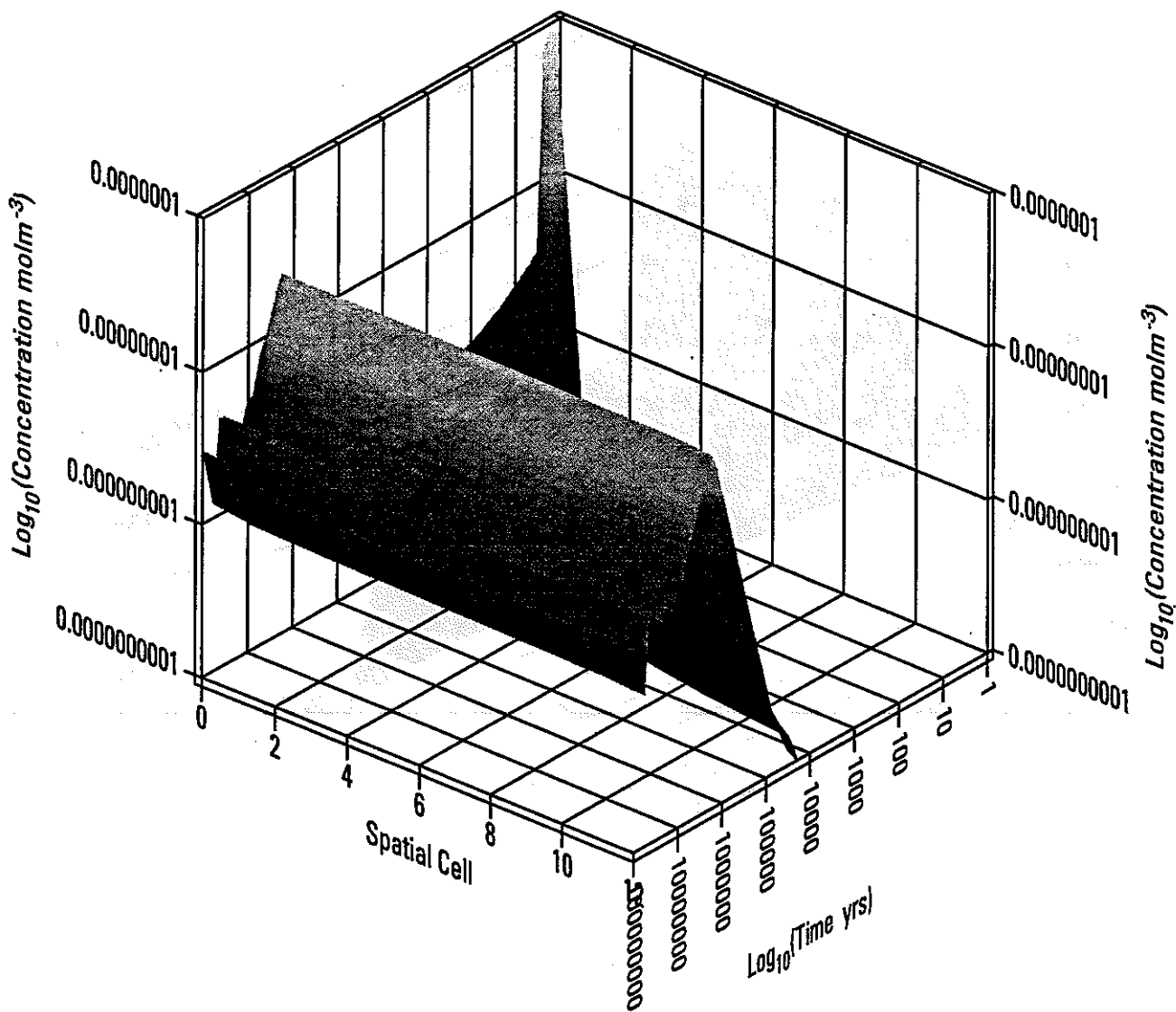


図3.3.2-19 人工バリア内の溶存イオン濃度分布 (U236,  $\mu=0.1$ )

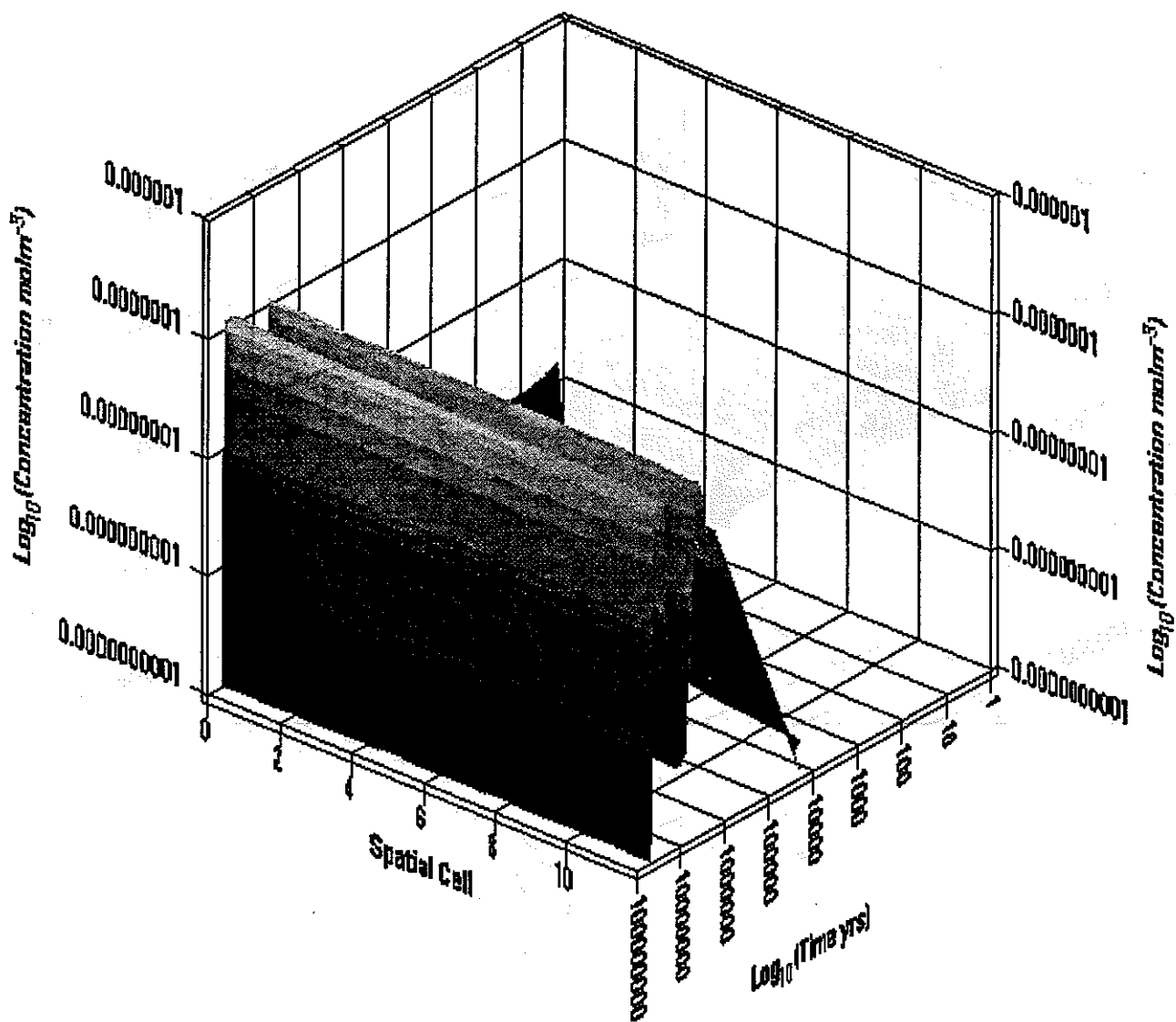


図3.3.2-20 人工バリア内の溶存イオン濃度分布 (U236,  $\mu=10$ )

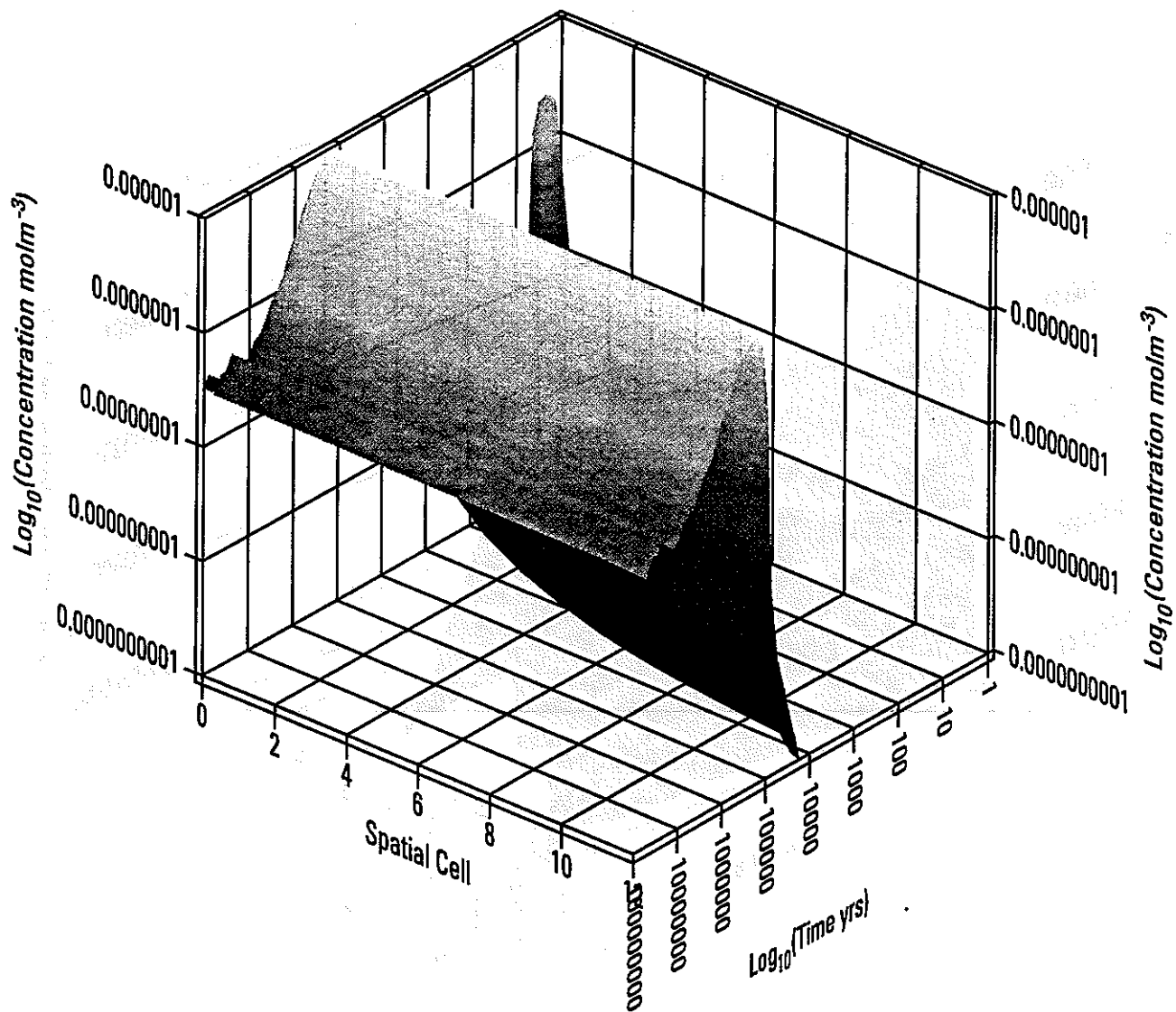


図3.3.2-21 人工バリア内の溶存イオン濃度分布 (U235,  $\mu=0.1$ )

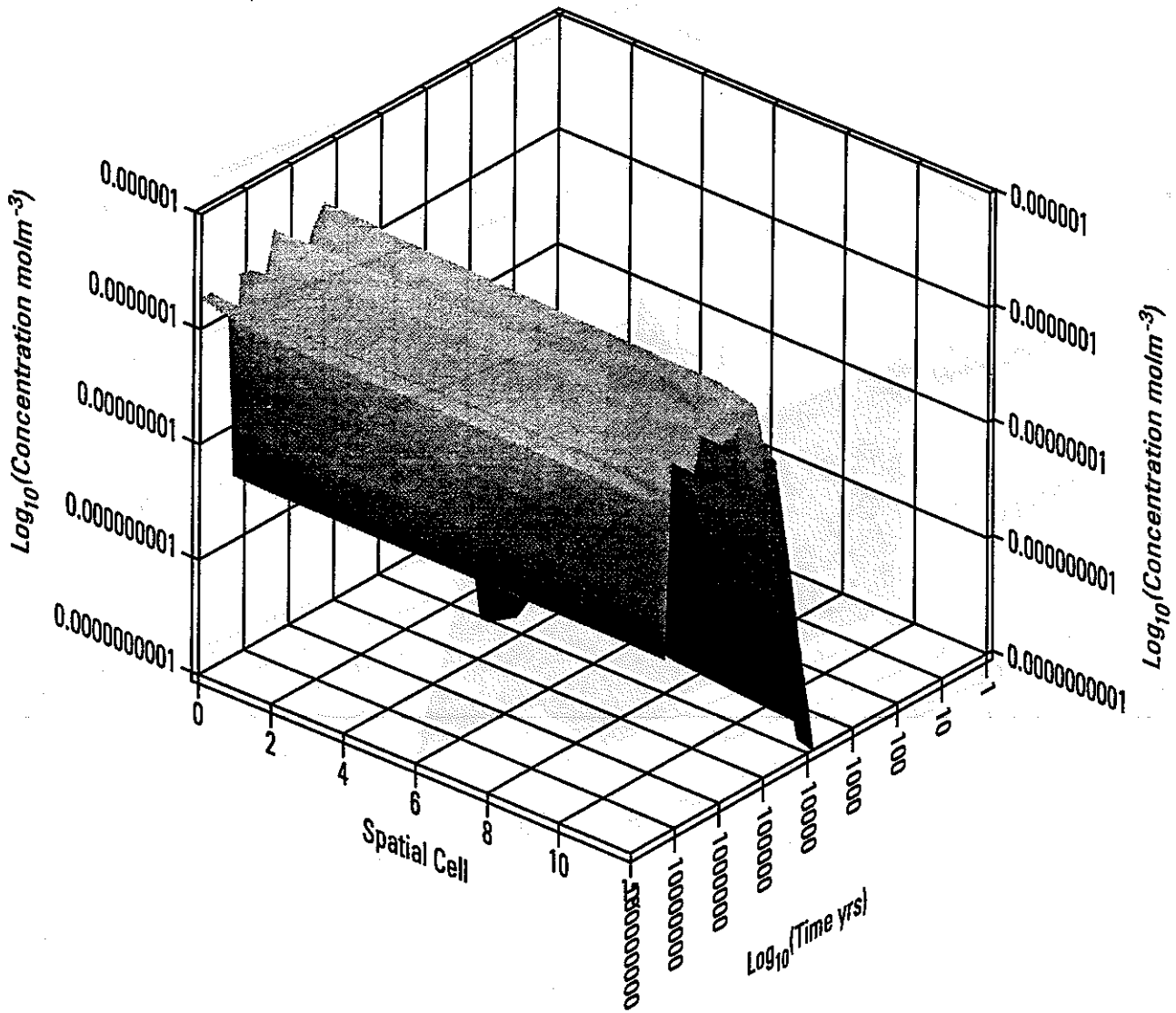


図3.3.2-22 人工バリア内の溶存イオン濃度分布 (U235,  $\mu=10$ )

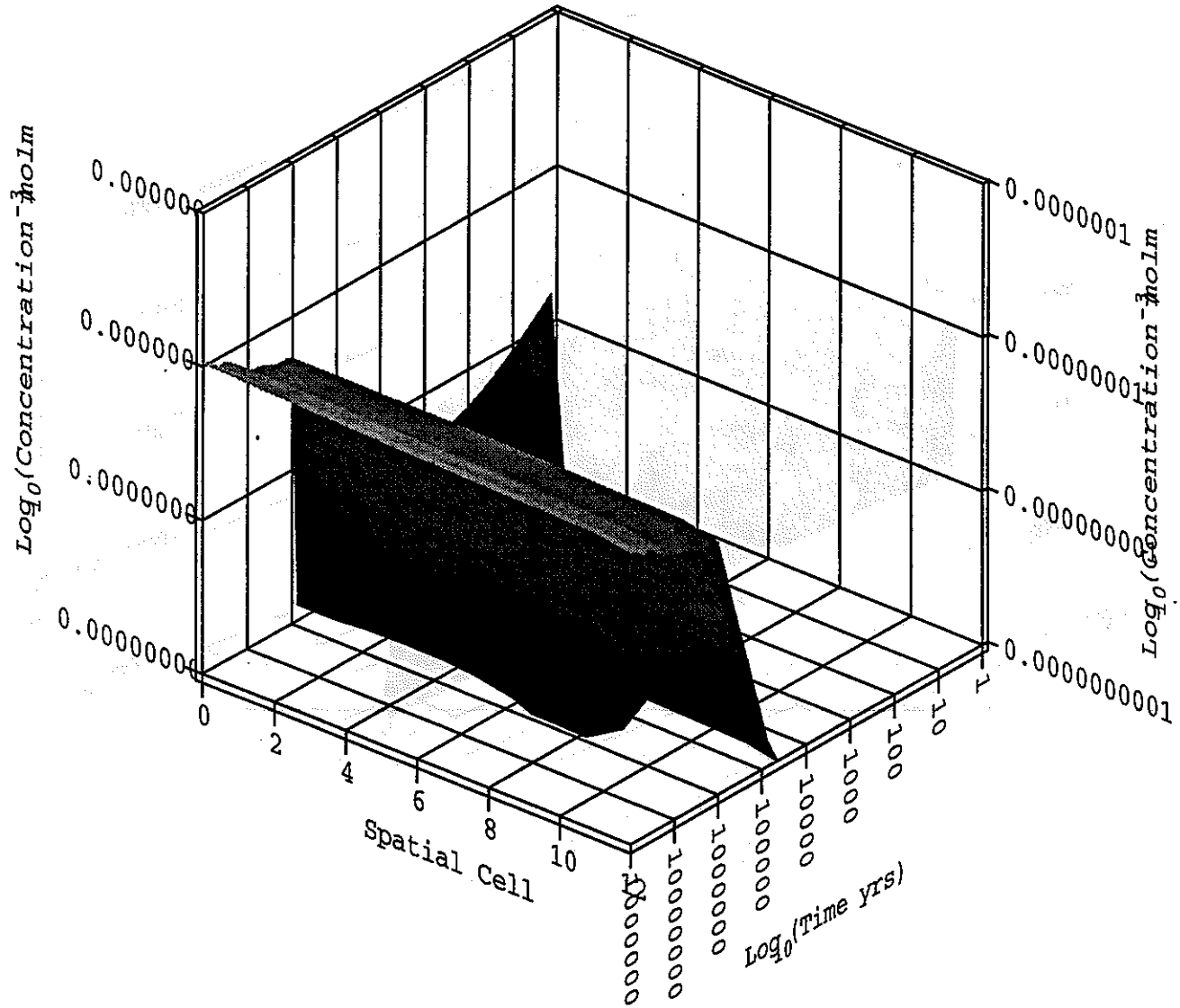


図3.3.2-23 人工バリア内の溶存イオン濃度分布 (U234,  $\mu=0.1$ )

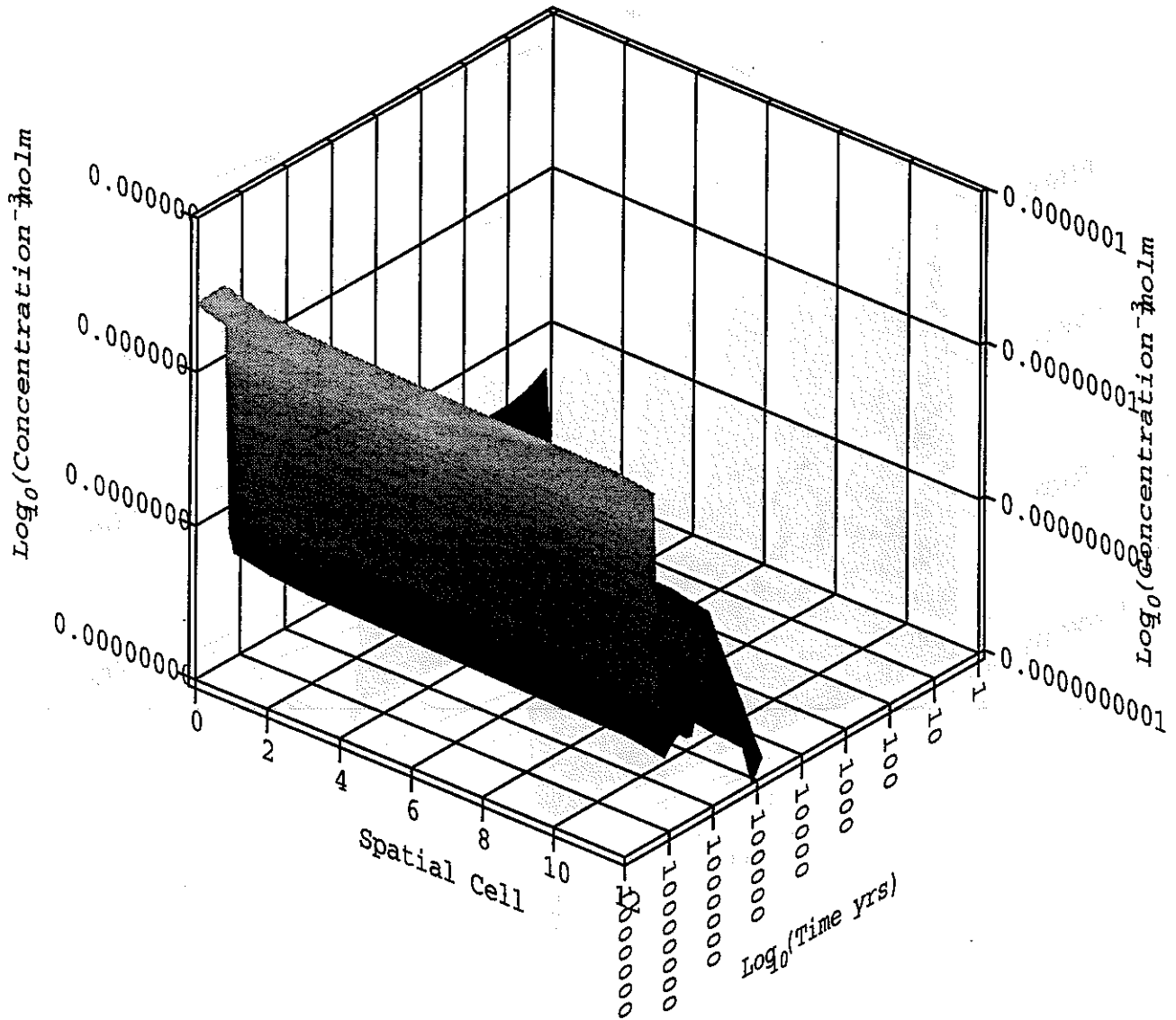


図3.3.2-24 人工バリア内の溶存イオン濃度分布 (U234,  $\mu=10$ )

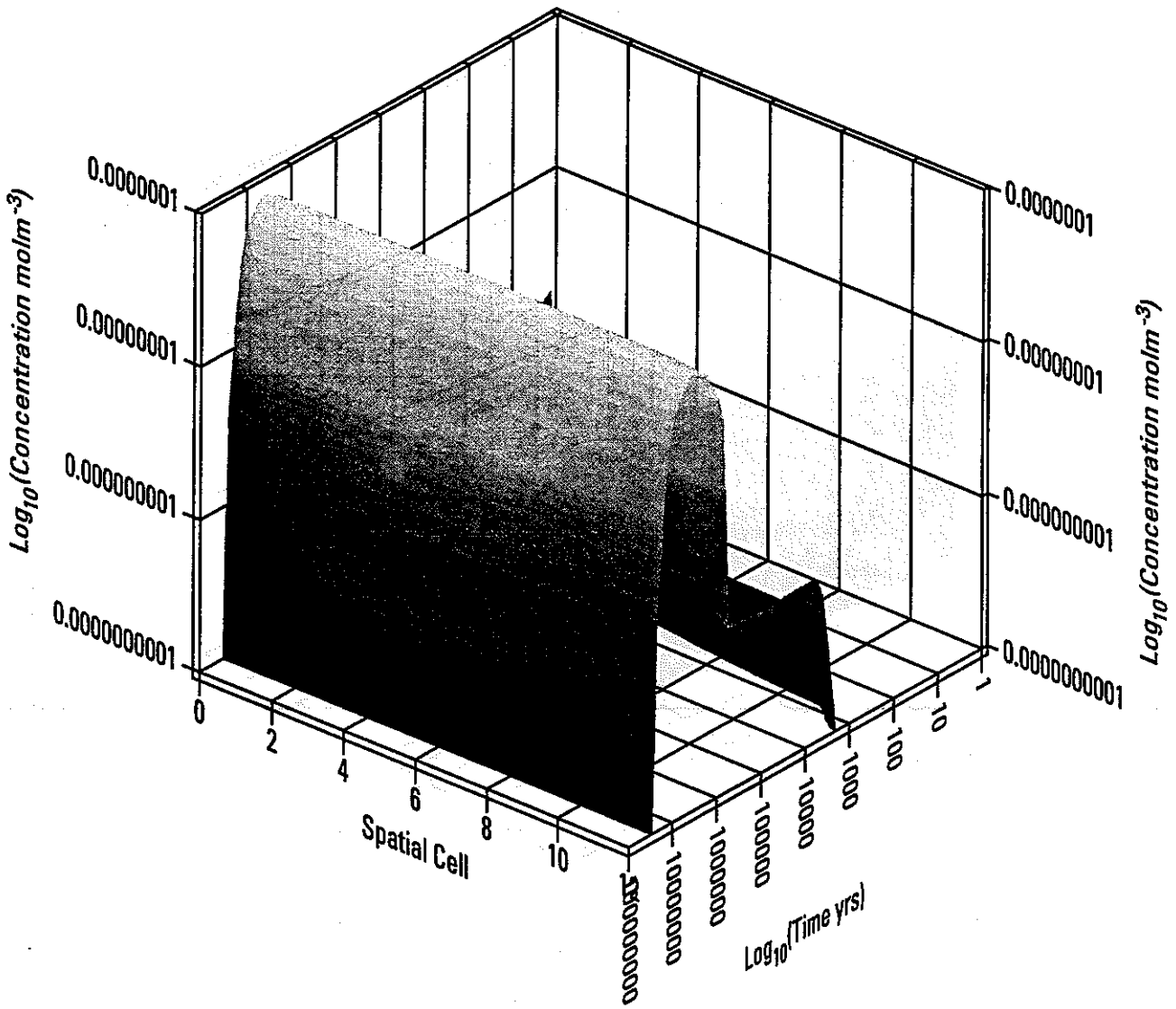


図3.3.2-25 人工バリア内の溶存イオン濃度分布 (U233,  $\mu=0.1$ )

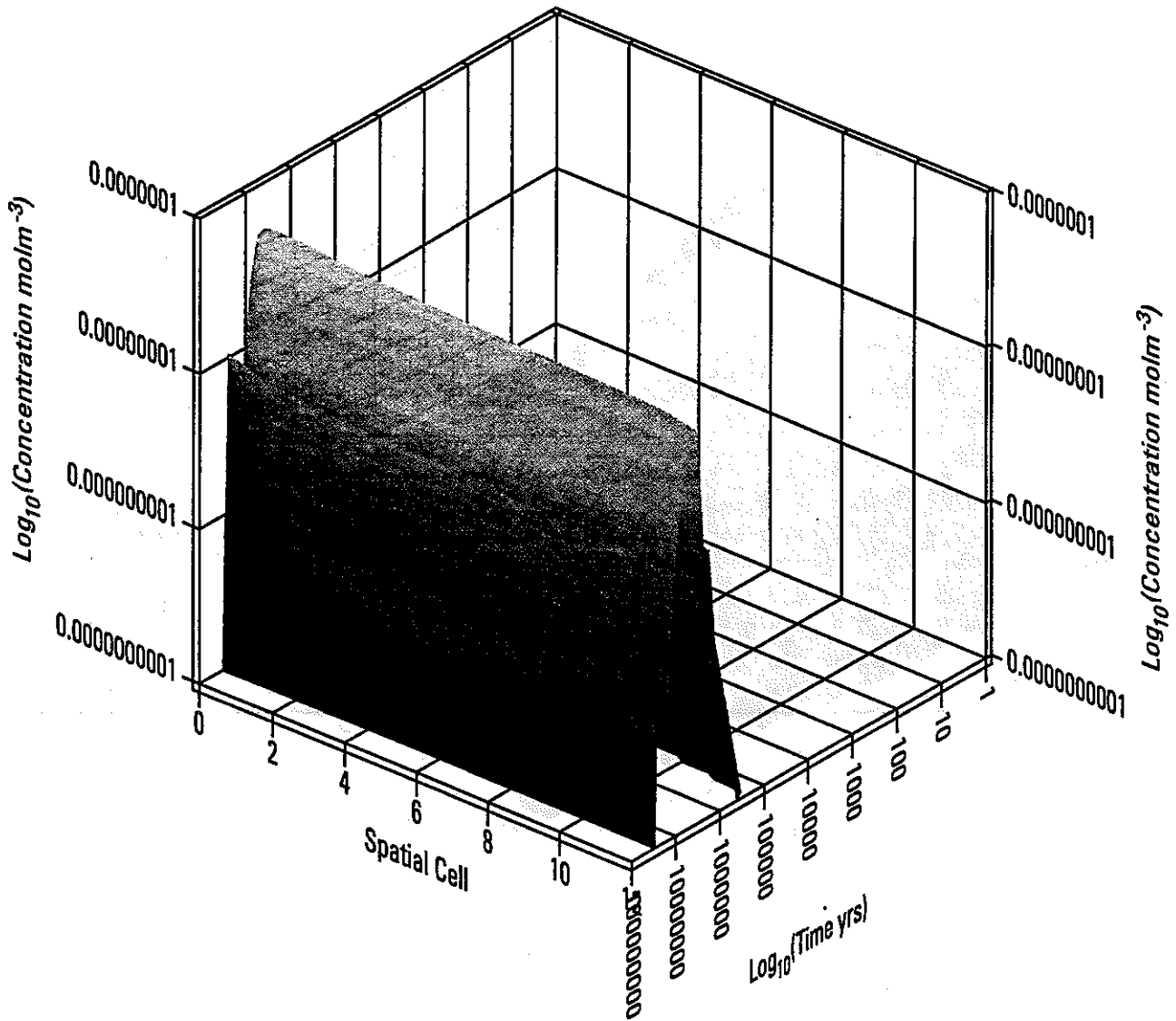


図3.3.2-26 人工バリア内の溶存イオン濃度分布 (U233,  $\mu=10$ )



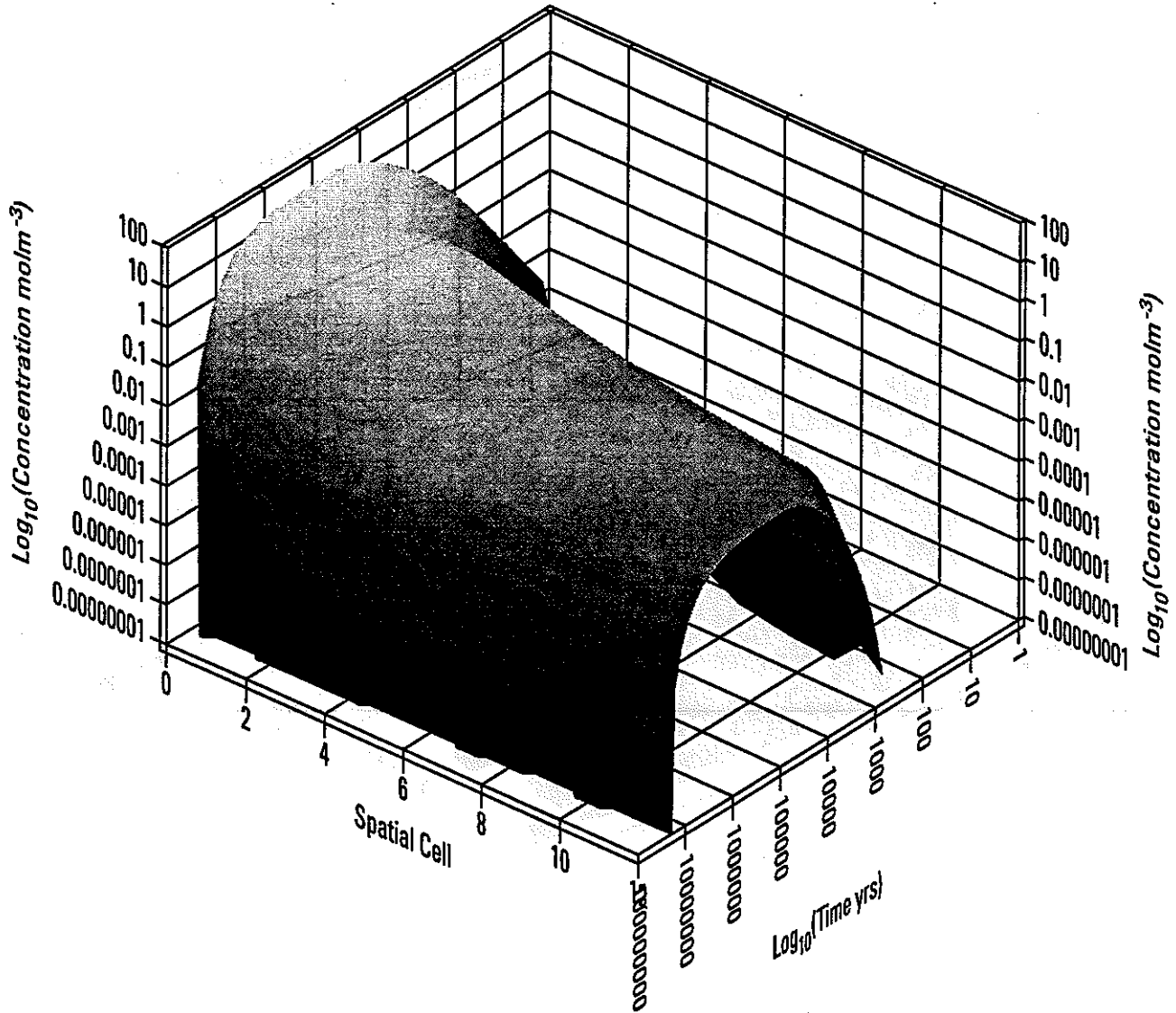


図3.3.2-27 人工バリア内の沈殿濃度分布 (Np237,  $\mu=0.1$ )

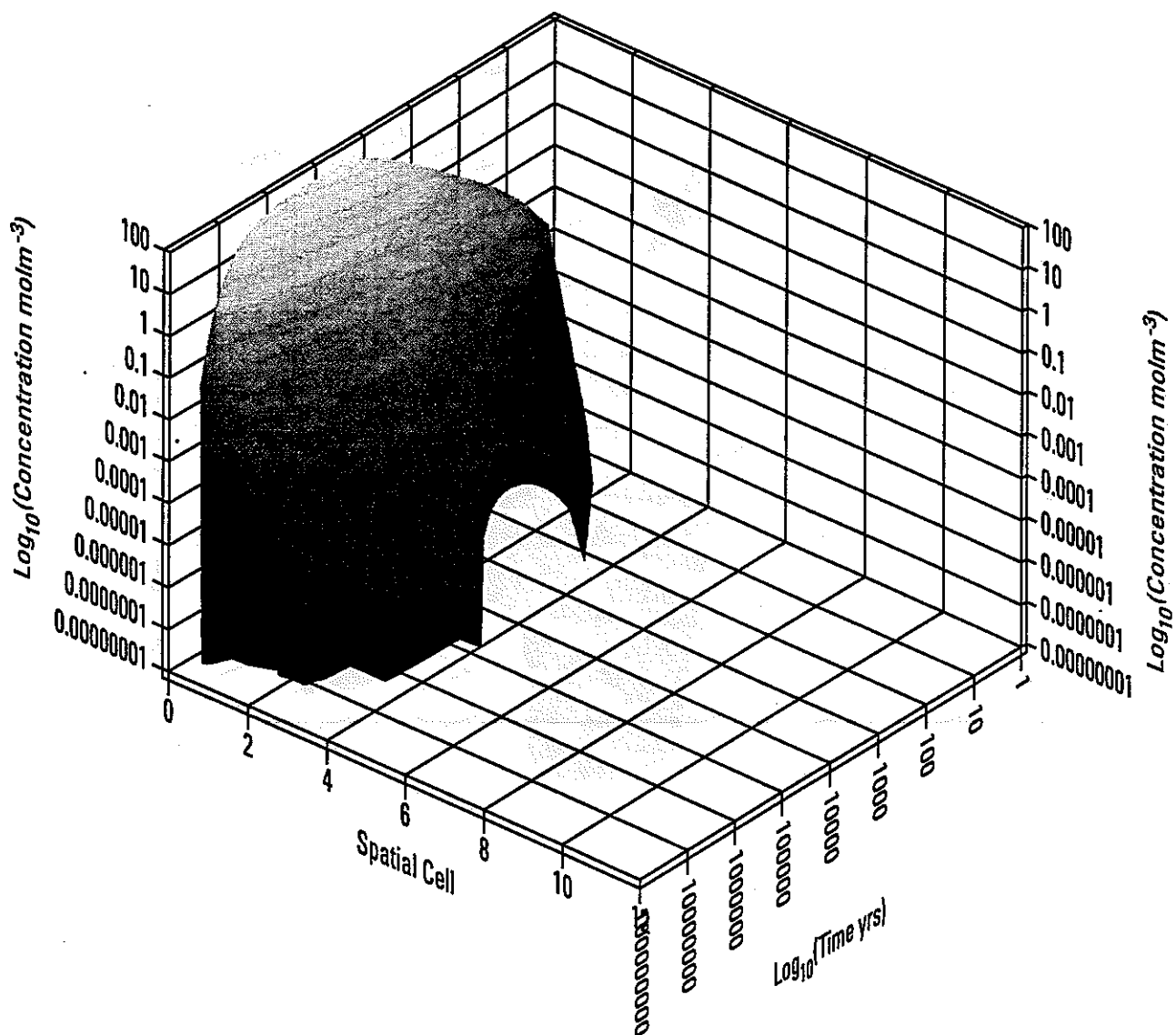


図3.3.2-28 人工バリア内の沈殿濃度分布 (Np237,  $\mu=10$ )

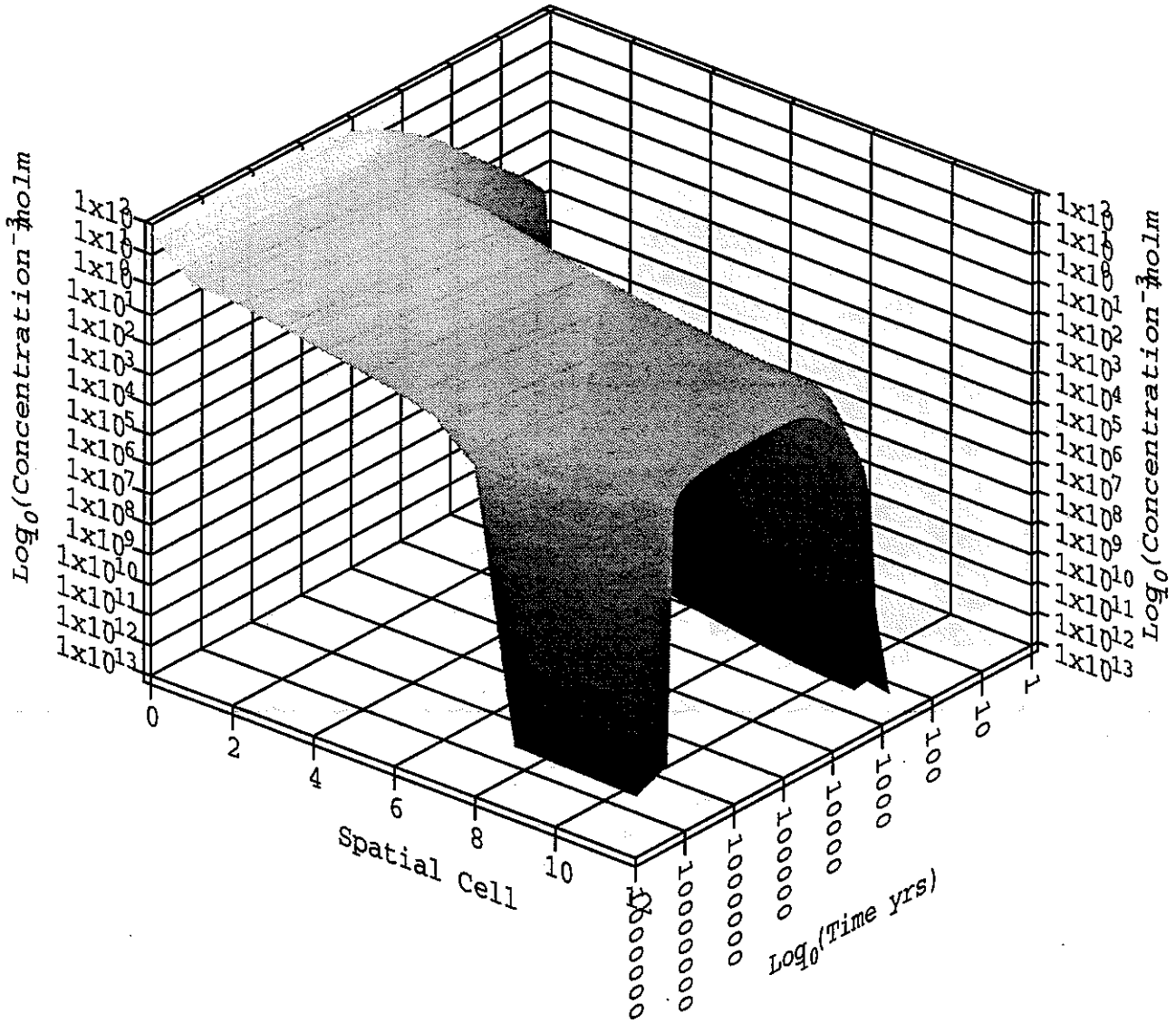


図3.3.2-29 人工バリア内の沈殿濃度分布 (全U,  $\mu=0.1$ )

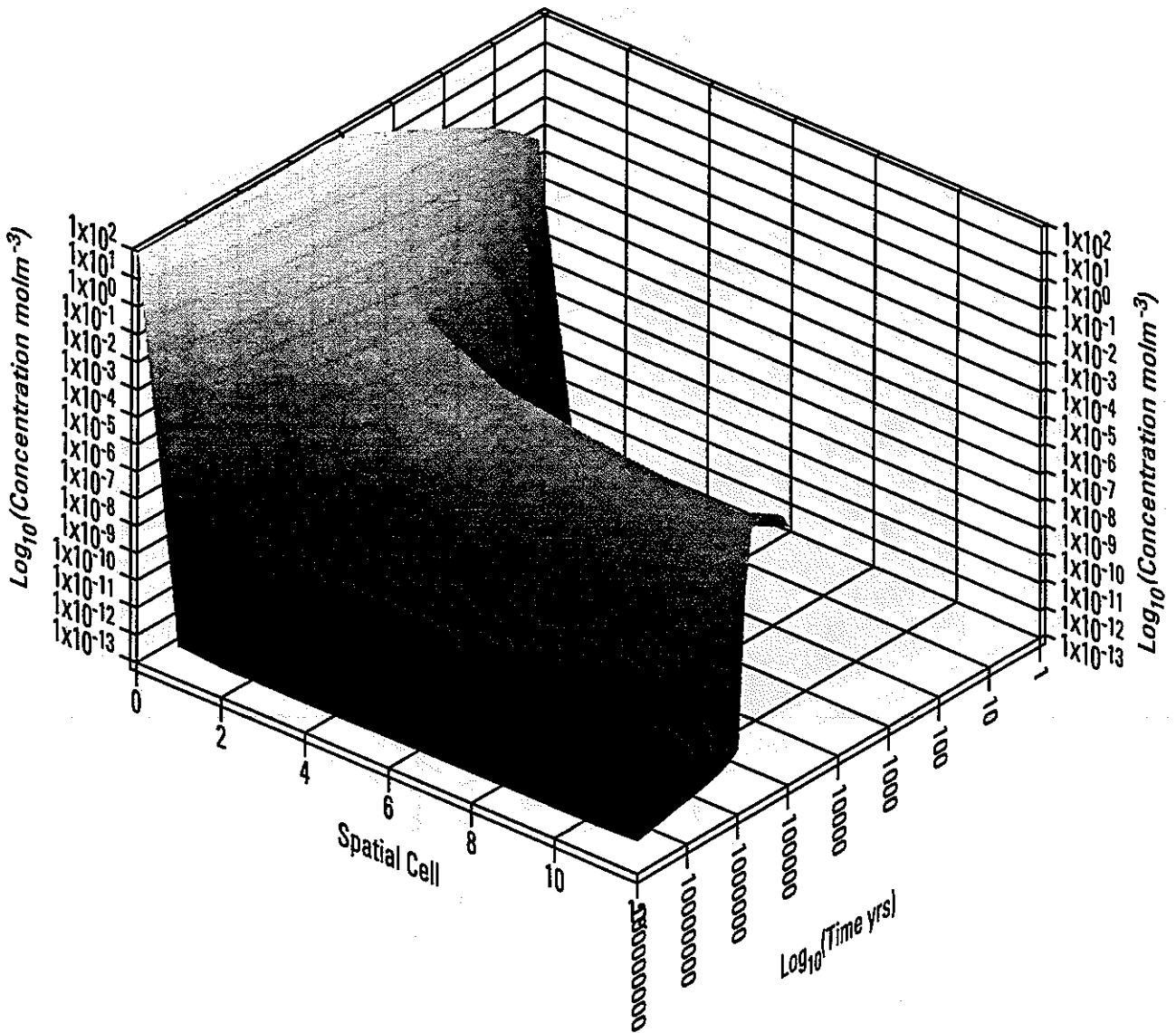


図3.3.2-30 人工バリア内の沈殿濃度分布 (全U,  $\mu=10$ )

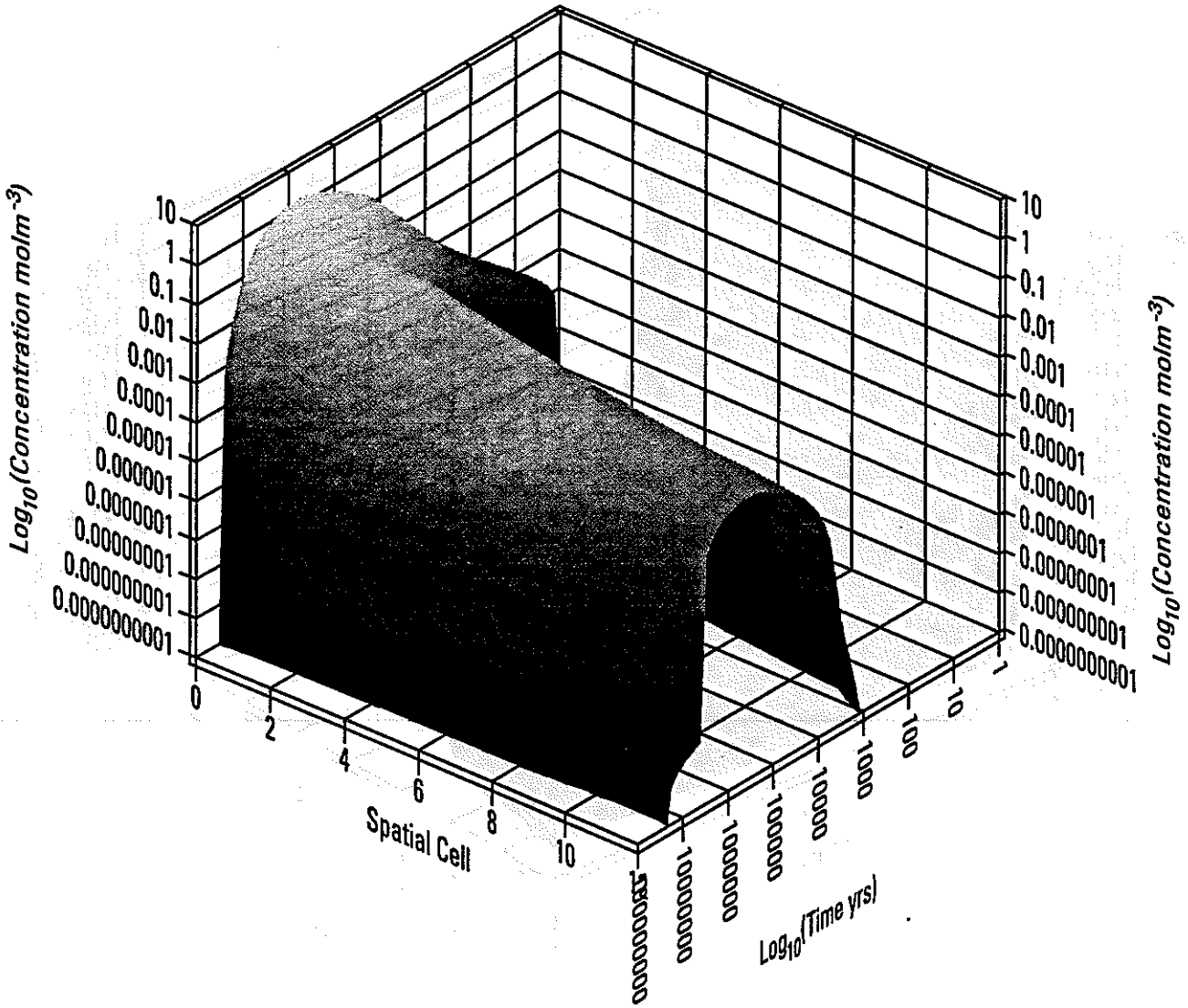


図3.3.2-31 人工バリア内の沈殿濃度分布 (U233,  $\mu=0.1$ )

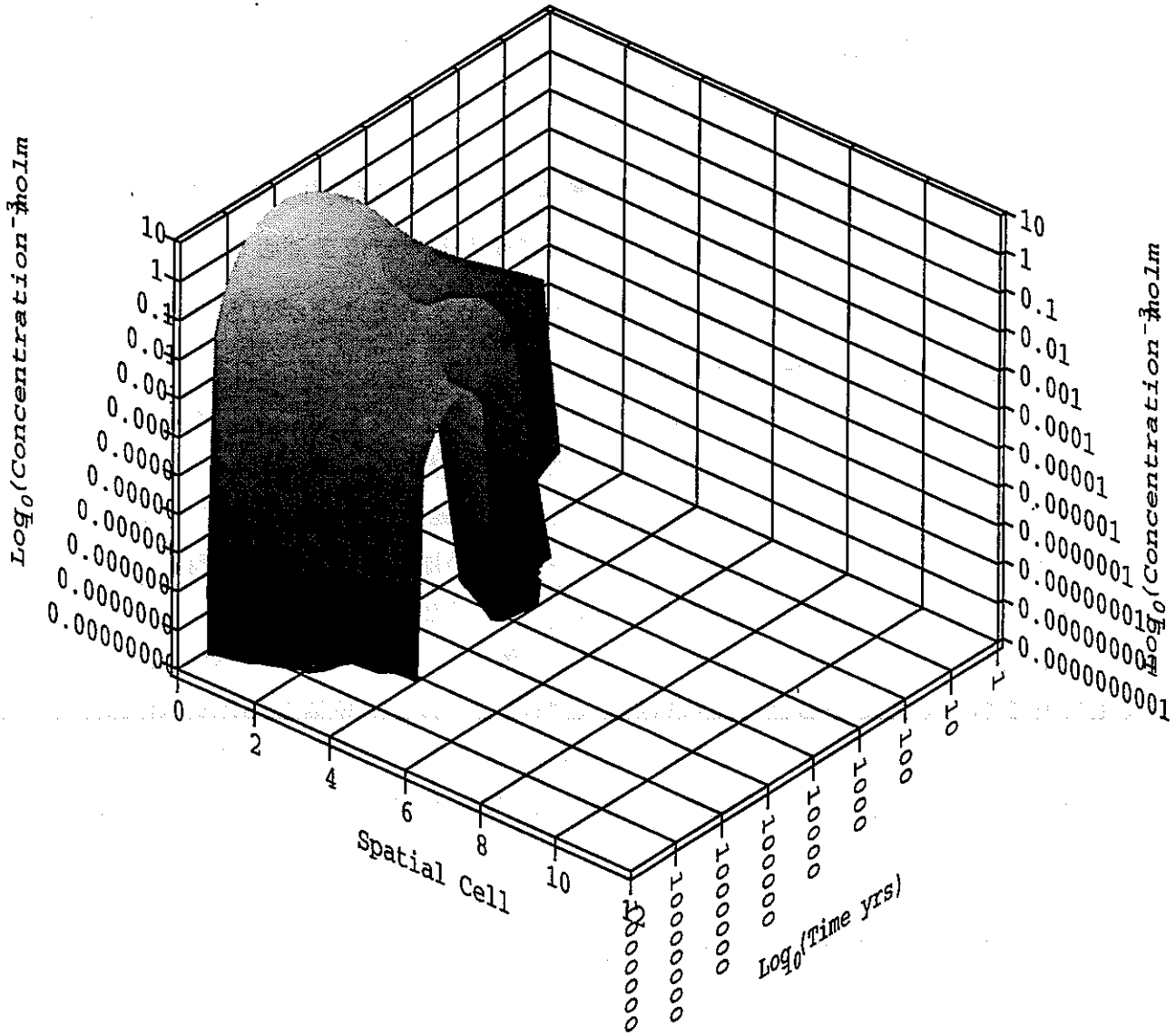


図3.3.2-32 人工バリア内の沈殿濃度分布 (U233,  $\mu=10$ )

図3.3.2-11から-16は、Am.241、Np.237及び全Uの人工バリア内溶存イオン濃度分布の時間的な変遷を示す3次元グラフである。いずれも、放出率のグラフと整合的な挙動を示していることがわかる。つまり、ガラスの浸出の影響が継続している初期には、物質移動フラックスと速度論的な反応がバランスした動的な定常状態（化学的非平衡）が見られ、その後溶解度限界に対応した化学的な平衡が現われている。また、Uの溶存イオン濃度分布の時間的な変遷を各同位体毎に見たものが図3.3.2-17から-26である。核種放出率の計算結果からも予想された様に、各同位体の存在比は元素としての定常状態が達成された後にも変動をし続け、結果として非常に複雑な溶解度配分の挙動を示していることがわかる。

図3.3.2-27から-30は、Np.237及び全Uの沈澱濃度分布の時間的な変遷をまとめたものである。Np.237については、 $(\mu=0.1)$ の場合にゆるみ域にまで達していた沈澱フロントが $(\mu=10)$ の場合にはガラス固化体近傍に留まっていることが明らかである。そして、ガラス浸出終了後はこの沈澱が新たなソースとして核種を液相側に供給しているものと考えられる。また、全Uの場合には、いずれのケースでも沈澱フロントがゆるみ域にまで達している。一つの同位体（U.233）に着目して沈澱濃度分布を整理したものが図3.3.2-31及び-32である。このうち特に後者は、全Uとは異なりU.233の沈澱フロントがガラス固化体近傍で留まっていることを示している。この様に沈澱という種類の形態に限っても位置によって同位体比が異なる理由としては、U.233の沈澱がそれ自体として液相中を移行してきたのではなく既にNp.237として沈澱していたものから放射性壊変によってもたらされたものであると考えられる。これは、フロント位置が前出のNp.237のフロント位置と類似していることも整合的である。また、各グラフにおいて沈澱濃度が急激に低下しているのは、対応する位置と時刻において液相側の濃度が不飽和に転じているためである。

### 3.3.3 単一崩壊系列の場合との比較

前節で述べた複数崩壊系列を考慮した計算の結果は、単一の崩壊系列のみを考慮した場合の結果とどの様にあるいはどの程度異なるのであろうか。前節に述べた種々の考察から見て、UのU.238以外の同位体については、複数の同位体間の競合効果により単一崩壊系列での計算結果とは異なるものであると予想される。この疑問に答えるために、 $4n+1$ 系列のみを考慮して、相当する条件下での核種移行計算を実施した。例として、U.233の溶

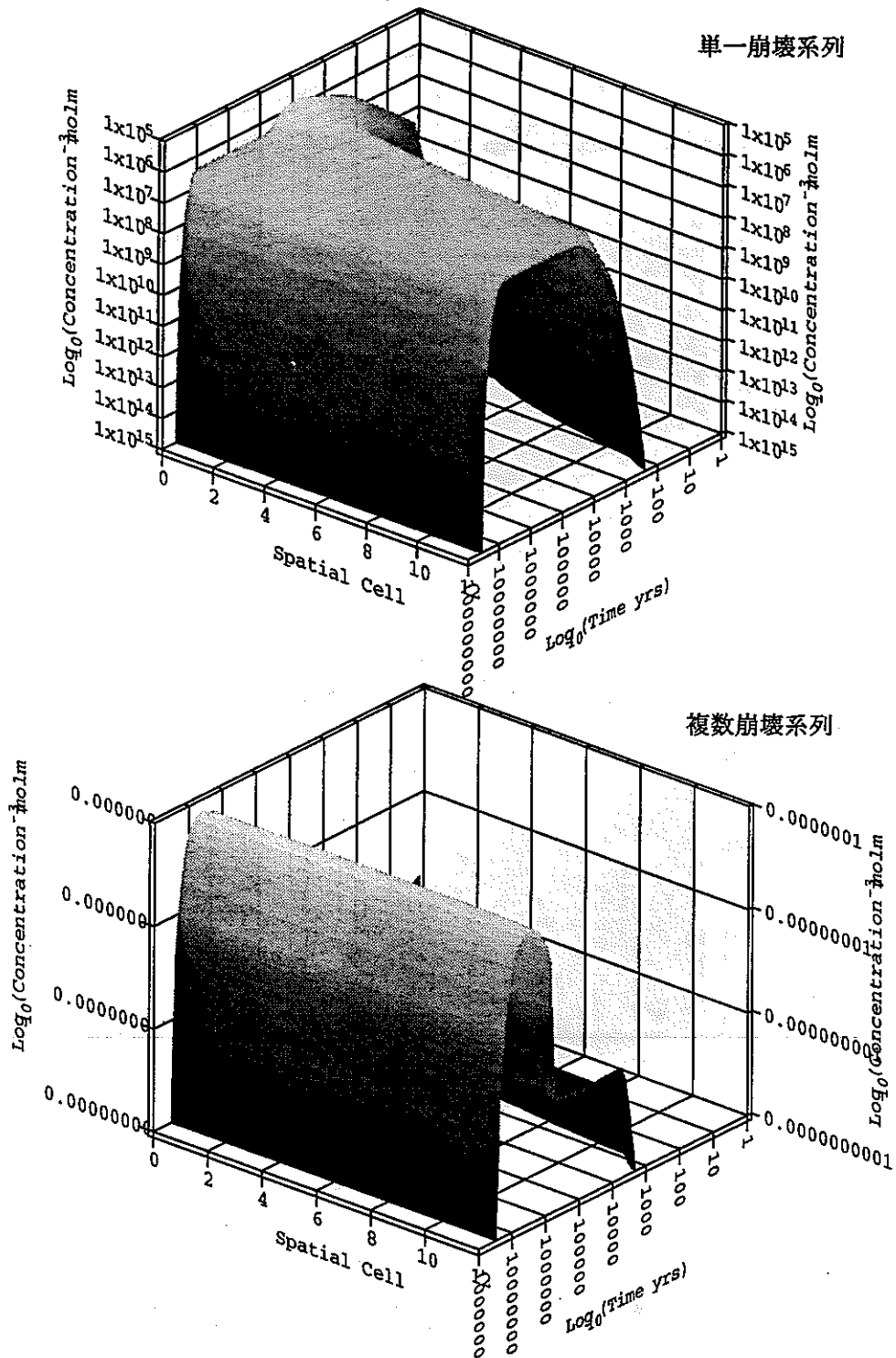


図3.3.3-1 単一崩壊系列と複数崩壊系列での溶存イオン濃度分布の比較 (U233,  $\mu=0.1$ )



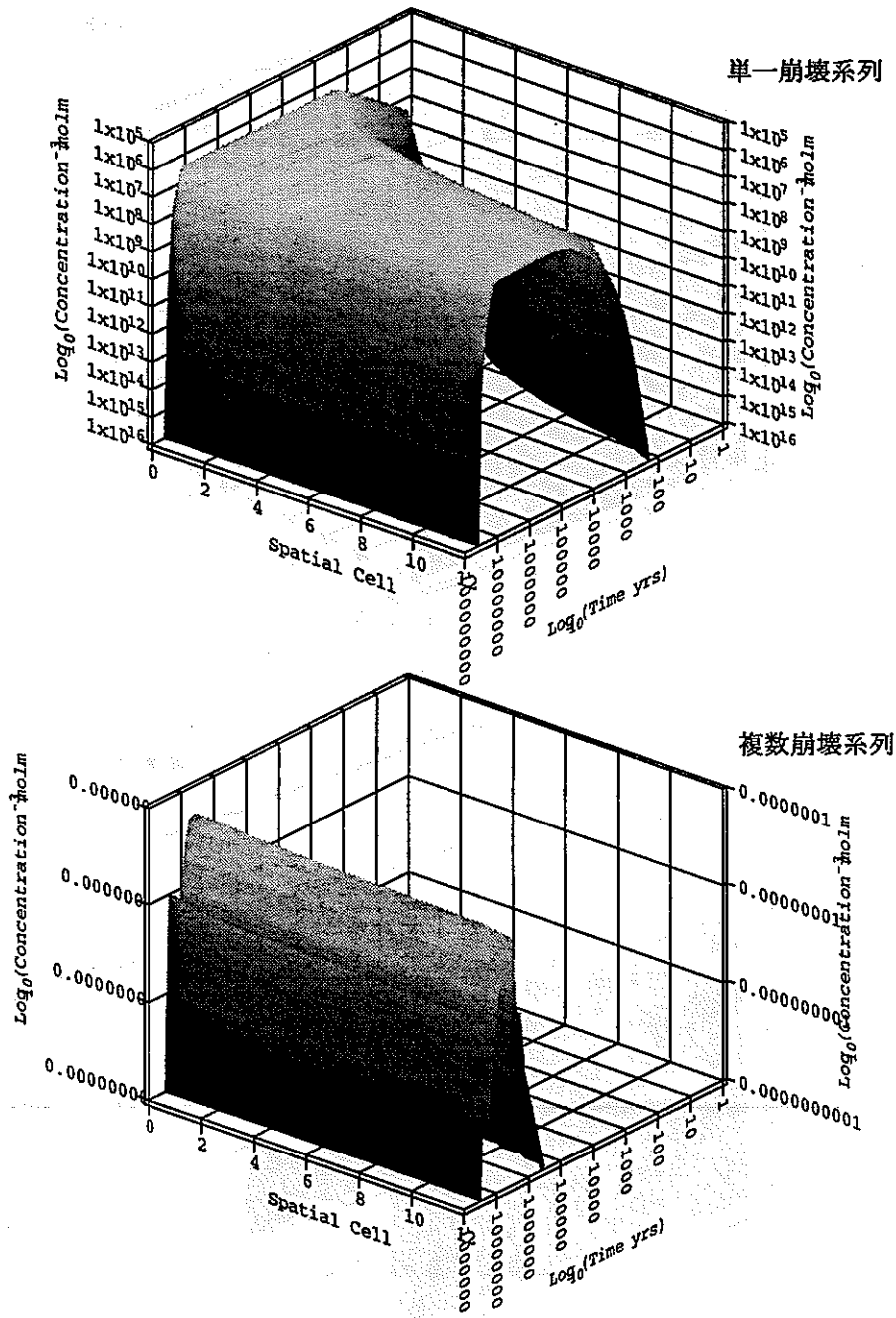


図3.3.3-2 単一崩壊系列と複数崩壊系列での溶存イオン濃度分布の比較 (U233,  $\mu=10$ )

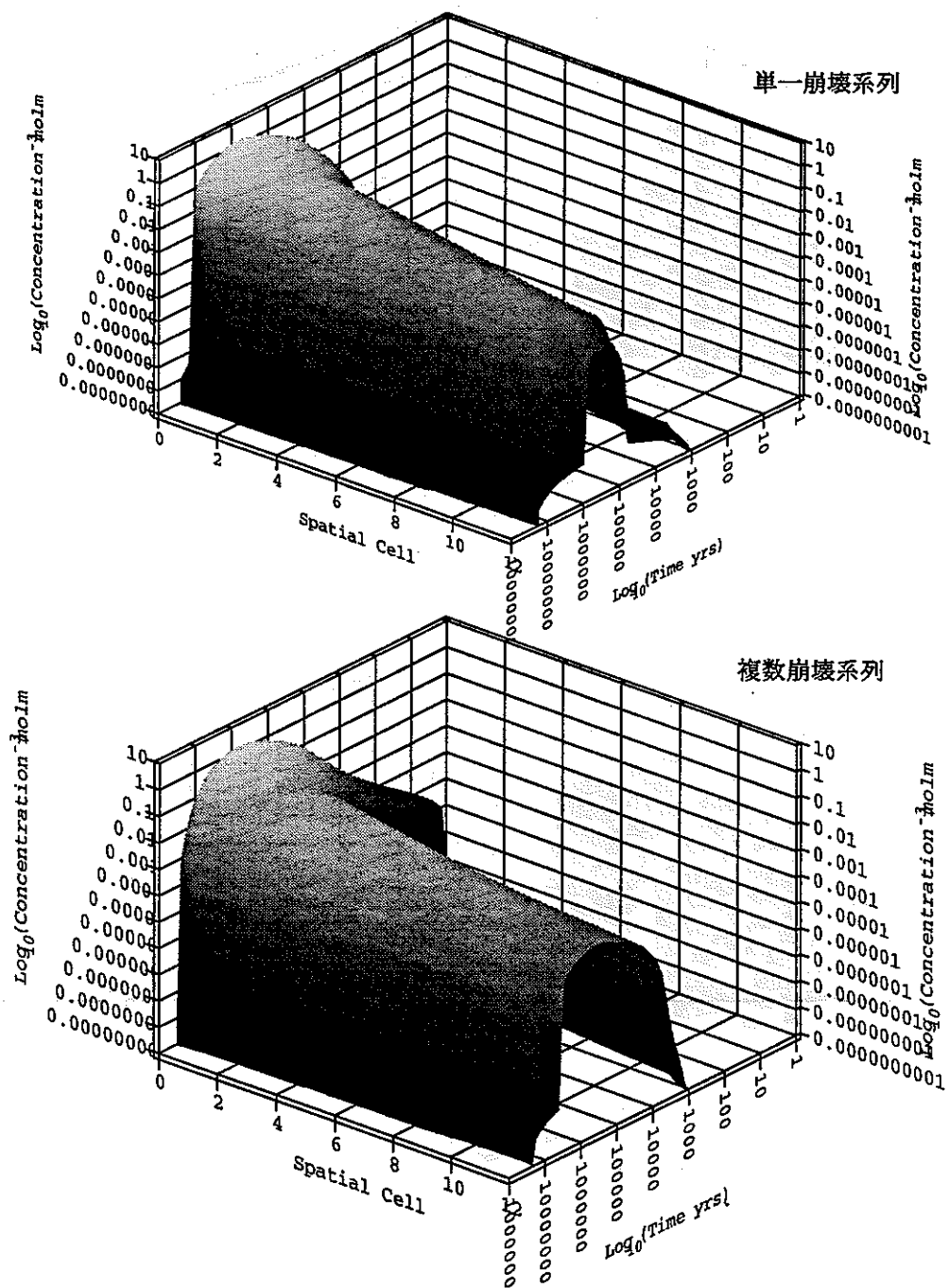


図3.3.3-3 単一崩壊系列と複数崩壊系列での沈殿濃度分布の比較 (U233,  $\mu=0.1$ )

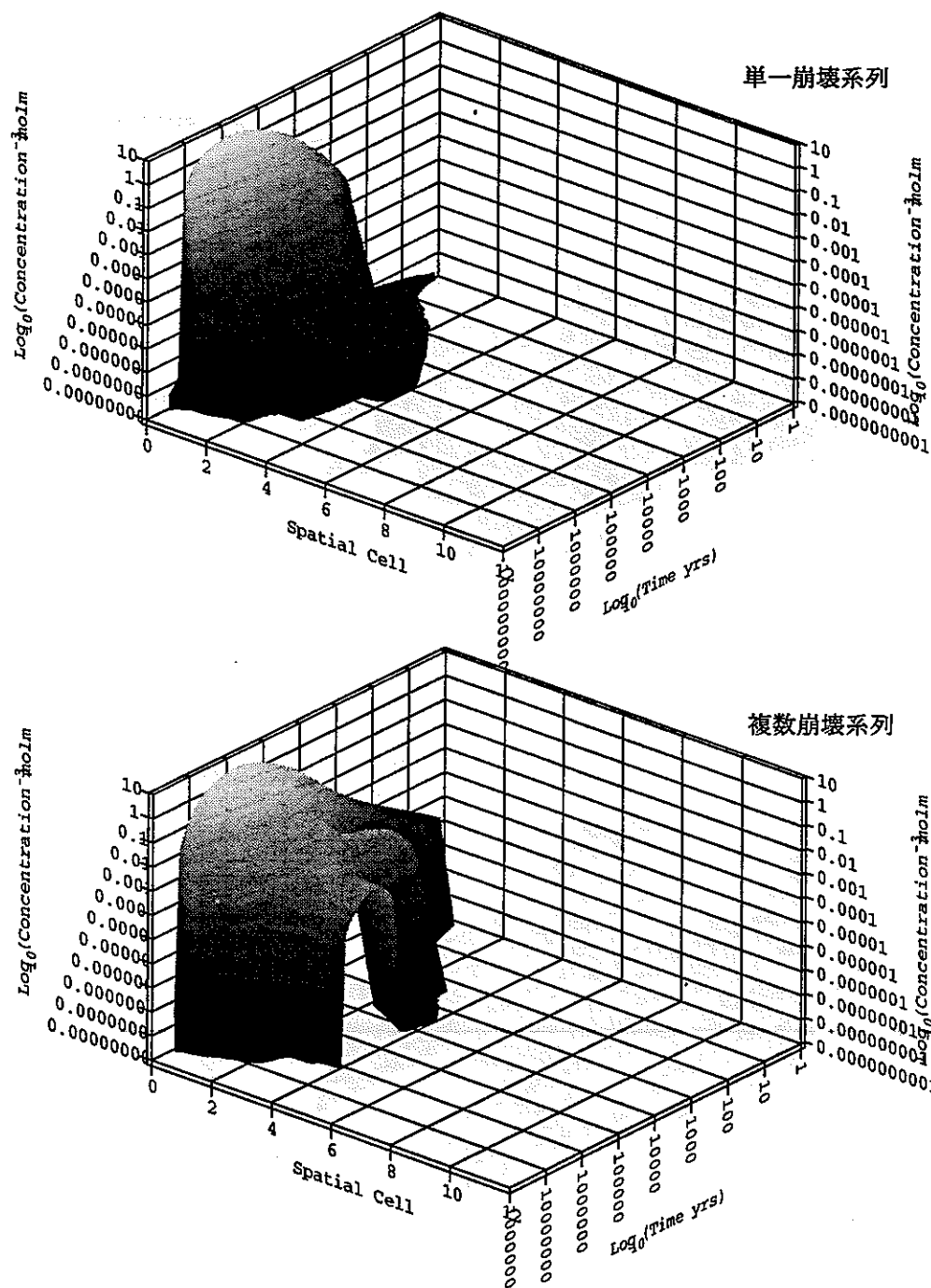


図3.3.3-4 単一崩壊系列と複数崩壊系列での沈殿濃度分布の比較 (U233,  $\mu=10$ )

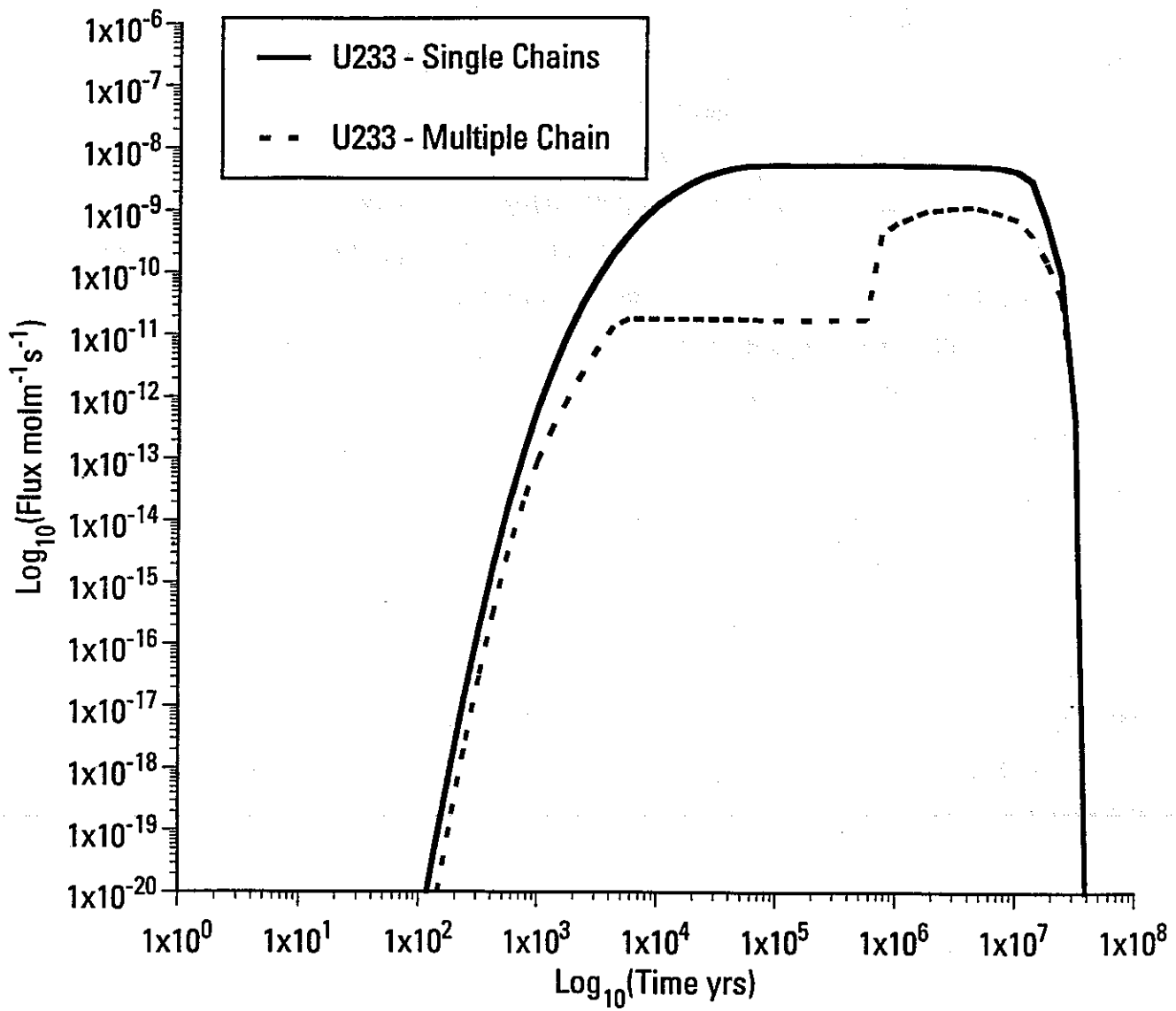


図3.3.3-5 単一崩壊系列と複数崩壊系列での核種放出率の比較 (U233,  $\mu=0.1$ )

存イオン及び沈澱のそれぞれについての人工バリア内濃度分布を、複数崩壊系列の場合と単一崩壊系列の場合とで比較した結果が図3.3.3-1から-4である。複数崩壊系列を考慮した場合に、他の同位体に影響されて溶存イオン及び沈澱濃度ともに時間的な変遷のパターンが大きく異なっていることは明らかである。このことは、複数崩壊系列を同時に計算することの正当性がある程度示しているものと考えることができる。しかしながら、図3.3.3-5に示す通り、最大放出率という性能評価上最も重要性の高い尺度についての差は、評価の用途や安全裕度によって必ずしも有為なものではないと考えられる。また、計算効率の観点から比較すると、単一崩壊系列について1億年の計算をするのに要するCPUタイムはSciliconGraphics社のIRIS機で約15分つまり4系列全体で約1時間であるのに対して、複数崩壊系列の場合にWEIGHTや関数hsmoothを種々に変えて得られた最短時間でもその5倍程度を要する。この5倍という差は、現時点では、Uの各同位体の存在比が固相及び液相でめまぐるしく変わり真の意味での定常状態が達成されない複数崩壊系列での問題自体が、数値解法に依らず本質的に有している困難に対応するものと考えられる。より高速の計算機を用いるとしても、いくつかの比較的限られた数のケースについて複数崩壊系列の計算を行うことは必要であるが、膨大な数を処理する必要のある感度解析や不確実性解析を全てこれと同じ設定で実施する必要があるかと言う点については大きな疑問が残ると言えよう。

### 3.4 今後の改良点及びプログラム最終仕様の提案

前節までに見てきたように、本年度の研究では複数の移行形態と複数の崩壊系列とを組み合わせた複雑な核種移行問題を体系的かつ効率的に定式化するために以下の諸点を骨子とする解法を試みた。

- 1) 広義拡散方程式のテンソル表現
- 2) .prespf ファイルによる定式化とWASP (Writer of Automated SPade files) による .spfファイル作成の自動化
- 3) SPADE (改良Gear法) による数値解析

本節では、まず、以上の3点について今後の種々の問題への適用に対する妥当性を検討した上、関連する改良点を明らかにするものとする。

#### 3.4.1 広義拡散方程式のテンソル表現に関する改良点

昨年度の研究成果、あるいは他の類似した解析コードにも見られる様に、複数移行形態と複数崩壊系列とを組み合わせた問題を数学的に定式化する際の最大の困難は、反応の種類（瞬時平衡を達成する様な早い反応及び速度論的な取り扱いが必要となる遅い反応）も考慮した移行形態の相異、同位体、元素、といった多元的な括り方が局面に応じて必要となることに起因する煩雑な表記である。この問題点に対しては、通常添字として認識する関連諸量を、一歩進んで多次元のテンソルとして表現する本手法は、対象とする問題の定式化として現時点では最適なものであると考えられる。また、

- ・物質移動テンソル
- ・放射性壊変テンソル
- ・ソーステンソル
- ・化学反応テンソル

といういずれの項についても定式化の内容は蓋然性の高いものであると考えられる（溶解・沈澱反応の速度論的な表現については前章に述べた一次反応速度式よりも複雑な形態が勿論考え得るが、速度論データが不足している現状では最も恣意性の少ない仮定であると言える）。改良の余地を有する箇所は、これら個別のテンソル表現ではなく、放射性壊変テンソルと化学反応テンソルとの組み合わせの問題である。より具体的に言えば、沈澱状態にある親核種が放射性壊変して異なる元素の娘核種となる場合、娘核種の化学形態をどの様に指定するかという点について任意性が残されている。特に、親核種の属する元素と娘核種の属する元素とで溶解度制限固相が異なる（例えば水酸化物と炭酸塩、等）場合、壊変後の娘核種の化学形態さらには対応する速度論的なデータは極めて限られており現象論的な理解は未だ確立されていない現状にあるものと考えられる。現在想定し得る選択肢としては以下のものが挙げられる。

- 1) 熱力学的には不安定であったとしても、改変直後の娘核種は親核種と同じ形態の沈澱になるものと仮定し、その後の溶解・沈澱を速度論的に追求する。
- 2) 上記の熱力学的に不安定な沈澱形態は速やかに溶解するものと仮定し、沈澱した親核種の崩壊により生成する娘核種を予め液相側に供給する。
- 3) 改変後の娘核種は、初めから当該元素について熱力学的に安定となる形態として沈澱するものと仮定する。

今回の解析では、上記の内3)の仮定を採用して解析を実施したが、この時、娘核種の属する元素の溶解度制限固相について液相濃度が不飽和である場合、各タイムステップで崩壊によって生じた娘核種の沈澱を負になることなく溶解させるために次のタイムステップを極く小さく採る必要が生じる。また、沈澱消失時点において反応速度が不連続な振る舞いを呈することから、このようなタイムステップ管理は非常に厳しいものになるという難点が生ずる。このような事情は、溶解速度のより大きい1)ではさらに強調されることとなる。このような事情から考えれば、今後の解析において2)の仮定に基づく定式化を行うことが主として後述するSPADEの計算効率の向上という観点で改良につながる可能性がある。しかしながら、この仮定を現象論的に正当化するためには、崩壊連鎖を含んだ溶解沈澱の実現象について何らかの観察事実を提供することが求められる。例えば、親核種の沈澱が結晶を形成しておりその結晶の内部は液相と接していない様な場合、娘核種の沈澱はたとえ熱力学的に不安定であっても親核種の結晶をマトリクスとして埋め込まれているために未反応のまま残存する状況が想定し得る。このような状況が実際に発生するか否かについては、観察事実に基づく設定が必要である。因みに、もしも上記の例の様な状況が生じるとすると、対応する定式化の仮定は次の様なものとなる。

4) 放射性壊変後、娘核種は親核種の属する元素の沈澱が安定である限り固相側に安定に存在し、親核種の沈澱が溶解する際にcongruentに溶解する。

この第4の仮定もまた、2)と同じく3)あるいは1)で生じるような数値解法上の問題点にはつながらないことは後述する本プログラムの最終仕様を考える上で重要な意味を持つものと考えられる。

また、現在の定式化では(簡単のため液相と固相に一つずつの形態を考え、それぞれの濃度を  $u$  及び  $w$  とし、これらが非線形の反応項  $R(u, w)$  によって結ばれているものとする。)液相及び固相についての支配方程式がいずれも非線形項を有している。

$$\begin{aligned}\frac{\partial u}{\partial t} &= \Delta u - R(u, w), \\ \frac{\partial w}{\partial t} &= R(u, w).\end{aligned}$$

これは現象の物理的なイメージに直接対応するという意味で最もわかりやすい定式化ではあるが、プログラミングまで考慮した場合の計算効率という観点から言うと、非線形

項についてのJacobian行列を2回解く必要があるため必ずしも最適であるとは言えない。代替的な定式化（上の方程式系と等価であることは代入により簡単に確認できる。）としては、次のものが考えられる。

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial t}(u+w) &= \Delta u, \\ \frac{\partial w}{\partial t} &= R(u, w).\end{aligned}$$

この方法では、Jacobian行列の計算に要する労力が低減できることに加え、物質移動項と非線形反応項が同一の方程式内に共存することは避けられるために、ある程度の計算効率の向上が期待できると考えられる。

### 3.4.2 .prespf ファイルによる定式化とWASPによる.spfファイル作成の自動化に関する改良点

3.4.1に述べた様に、テンソルを用いた広義拡散方程式の表現は複数移行形態、複数崩壊系列の問題に適したものであると考えられる。しかしながら、この手法はあくまで数学的な定式化にかかわるものであり、実際にSPADE上で.spf ファイルを作成し計算を実行するためには、従来の表記法のみでは依然として各テンソルを成分毎に入力するという操作が求められることとなる。.prespf ファイルによる定式化とWRITE SPADEプログラムによる.spf ファイル作成の自動化は、この様な意味からテンソル表現の長所である多数の成分を括った取り扱いを分解することなくプログラミングするものとしてやはり現時点では最適の方法とすることができる。勿論、コマンドの追加や各コマンドの具体的な形式の最適化については改良の余地が残されており、これらについては今後種々の問題にこの手法を適用していくことを通じて熟成を図っていくことが適当と考えられる。

ソフトウェアとしての将来の改良の余地が大きい部分は、個々の.prespf ファイルの作成・表記法やWASP を用いた.spfファイルへの変換に関するものよりもむしろ感度解析あるいは不確実性解析を実施する際に多数のシャドウモデルを統計的に作成し対応する計算を実行するプリプロセッサと、多数ケースの計算結果から必要な個所を抽出しグラフ作成に適した形式のファイルとして整理するポストプロセッサである。これらについては、実施効率を最大とするためには将来的にプログラムの一部として内蔵されているものとなるのが好ましいが、現時点では感度解析及び不確実性解析についての手法開発を進



めている所であり、この手法開発の成果を適宜反映することが可能となる様、極力柔軟な構成を採ることの利点の方が優るものと考えられる。この様な意味から、来年度以降数年間の研究では、このプリ・ポストプロセッサについては現行のもの（WASPに対応するCシェルスクリプト、詳細については付録-2参照）と同様にCシェルスクリプトによりその機能を確保することが適切である。

### 3.4.3 SPADE（改良Gear法）による数値解析に関する改良点

速度論的な化学反応項は一般に濃度に関して非線形な関数形を採るものであり、かつ、特に溶解・沈澱反応は以下の2種類の数学的に特異な挙動を含むものである。

- 1) 一旦生成した沈澱が再溶解して消失する際の反応速度の不連続性
- 2) 沈澱の存在しない状態で液相濃度が過飽和領域に達する時点で反応速度が液相濃度に対して微分不能であること

この様な問題の非線形性及び特異性により、速度論的な反応項を含む一般の広義拡散方程式は解の急激な過渡挙動を含んだいわゆる数値解法上の「硬い(stiff)」問題となる。この様な硬い問題は、時間について差分された代数方程式系の係数行列が極端に大きさの異なる固有値を有するために生じる。SPADEで採用している数値解法は改良Gear法と呼ばれるものであり、ここではこの様な硬い問題において解の急激な変化が生じる際にタイムステップの大きさと予測計算における近似多項式の次数を常に最適化しながら計算を実行することにより数値不安定性を最小化することを主眼とした手法であり、現時点ではこの様な問題に対する最良の解法であることが知られている（詳細は昨年度報告書付録のSPADEマニュアル理論編参照）。しかしながら、このことは改良Gear法により硬い問題に起因する数値解法上の不安定性が完全に消失することを意味するものではなく、むしろ、この解法を採ることにより許容誤差を小さくしていけば原理的にはどれほど硬い問題についても解が爆発(blow up)することなく計算を実施することが可能である（どれほど時間がかかるとしても）ということ、そして、所定の許容誤差の範囲内で解を求める効率が他の手法よりも飛躍的に高いということの意味するものである。

以上の様な意味からは、SPADEによる実際の計算においては未知数全体としての許容誤差及びこれを各未知数に配分する機能に該当するWeightを正しく設定することが重要となる。許容誤差を変化させた場合の典型的な解の振る舞いは次の様なものである。

- 1) 許容誤差が小さすぎる場合：各タイムステップで必要となる収斂計算の繰り返し数が増大し、結果として計算効率が著しく低下する。
- 2) 許容誤差が大きすぎる場合：時間の経過に伴い、各タイムステップで許容されていた誤差が蓄積しついには真の解の軌道を完全に離れて解が爆発する（実際的には、収斂計算が収束しなくなり計算が強制終了される）。

現在のSPADEでは、許容誤差及びWeightの設定がユーザーに委ねられているために、上記の1)及び2)を避けるような最適な設定は何回かの試行に基づき経験的に見いだす以外に方法がない。また、これらのうちWeightの設定については、未知数についての各タイムステップでの推定値の関数として表現することにより時間的に変化させることが可能であるがこの表現における関数形自体は固定されていなければならない。将来の改良点としては、この許容誤差及びWeightの設定においてユーザーが最適値を見いだす作業を支援し、理想的には刻々と変化する系の状態に対応した時間依存の設定を得るようなSPADEの機能追加が考えられる。

#### 3.4.4 計算効率についての検討

前節において述べた様に、SPADEを用いた速度論を含む広義拡散問題の計算効率は一意的には決まらず、許容誤差とWeightの設定の関数となる。例えば、3.3にまとめた例題解析結果は、許容誤差とWeightを種々に変化させて計算が強制終了されない範囲で最大の計算効率を達成し得る最適値を試行錯誤により設定した結果である。因みに、例えば図3.3.2-7及び-8にまとめた複数崩壊連鎖の計算では、 $EPSSTEP=10^{-4}$ でCPUタイムとしてそれぞれ約5時間（SiliconGraphics社のIRIS機）を要しているのに対して、 $EPSSTEP=10^{-5}$ とした場合には十数時間を経ても計算は1000年程度以降には到達せず、逆に $EPSSTEP=10^{-3}$ とした場合には計算が強制終了されるという結果になった。この結果からもわかる通り、 $EPSSTEP=10^{-4}$ という設定は強制終了の生じない範囲での最大値に近いものと考えられる。実際、図3.3.2-7及び-8に見られる破過曲線のジグザグな挙動は計算のリスタートが行われていることに対応しているものであり、これ以上

EPSSTEPが大きくなった場合強制終了が生じる可能性を示唆している。また、この様なリスタートは解の滑らかなさを損なってはいるものの、現象の大極的な挙動は正しく計算されているものと考えられる。従って、ユーザーの目的とするものがこの様なリスタートの痕跡のない滑らかな解を得ることである場合には、異なる設定（より小さなEPSSTEP）を用いる必要がある。

また、今後計算効率の向上を図るという意味では上述した次の3つのポイントが重要であると考えられる。

- 1) 沈澱した親核種の崩壊によって生じる娘核種の化学形態の指定の変更
- 2) 非線形反応項と物質移動項が同一方程式に含まれないような定式化の変更
- 3) 最適な許容誤差及びWeightの設定をユーザーが見いだすことを支援できる様な SPADEの機能追加

### 3.4.5 プログラム最終仕様の提案

前節までに述べた通り、今年度の研究で提案した、

- 1) 広義拡散方程式のテンソル表現
- 2) .prespf ファイルによる定式化とWASP (Writer of Automated SPade files) による .spfファイル作成の自動化
- 3) SPADE (改良Gear法) による数値解析

を骨子とするプログラムは、その基本的な内容において、対象とする核種移行問題の解析に対して現時点で最適のものであるということが出来る。従って、来年度以降の研究で用いる本プログラムの最終仕様としては、本年度のプログラムの基本構成をそのまま踏襲しつつ以下の詳細な点についてそれぞれこれまでに述べた通りの改良をほどこしたものを最終仕様として提案する。

- a) 沈澱した親核種の崩壊によって生じる娘核種の化学形態の指定の変更

より具体的には、以下の二つの代替案を相互に比較しながら適用していくものとする。

- ・沈澱した親核種の崩壊によって生じる異なる元素の娘核種を全て当該元素の液相（より具体的に言えば溶存イオンを含む瞬時平衡グループ）に供給する。（娘核種の沈澱が速やかに溶解するという仮定に対応）
- ・沈澱した親核種の崩壊によって生じる異なる元素の娘核種は、娘核種自体の化学反応によって生成する沈澱とは（少なくとも）計算上は別の形態を採るものとし、概念的には次式で表現される様に親核種の沈澱とcongruentに溶出するものとする。

$$R_{pd} = R_p \frac{w_{pd}}{w_p} (1 - H[R_p])$$

但し、 $R_{pd}$ : 親核種 (p) の沈澱の放射性壊変により生じた娘核種 (d) の溶解・沈澱反応フラックス（沈澱を正の向きとする）

$R_p$  : 親核種の溶解・沈澱フラックス

$w_{pd}$ : 親核種の沈澱の放射性壊変により生じた娘核種の沈澱濃度

$w_p$  : 親核種の沈澱濃度

このモデルは、親核種の沈澱中で生成する娘核種が親核種の沈澱中に閉じこめられることにより、親核種の溶解物を実効的な溶解度制限固相として振る舞うことに対応している。

## b) 非線形反応項と物質移動項が同一方程式に含まれないような定式化の変更

この変更は、既に述べた通り、現在の定式化、

$$\frac{\partial u}{\partial t} = \Delta u - R(u, w),$$

$$\frac{\partial w}{\partial t} = R(u, w).$$

但し、 $u$ : 液相中の可動な形態の濃度

$w$ : 固相濃度

R(u, w): 溶解・沈澱反応

では液相及び固相についての支配方程式がいずれも非線形項を有しているのに対して、次の代替的な定式化、

$$\begin{aligned}\frac{\partial}{\partial t}(u+w) &= \Delta u, \\ \frac{\partial w}{\partial t} &= R(u, w).\end{aligned}$$

を考えることにより、非線形なR(u, w)についてのJacobian行列の計算に要する労力が低減できることに加え、物質移動項と非線形反応項が同一の方程式内に共存することを避けるというものである。

また、以上のプログラム自体の変更に加えて、前述した様に最適な許容誤差及びWeight の設定をユーザーが見いだすことを支援できる様なSPADEの機能追加を行うことが好ましい。

## 4. 不確実性解析の必要性、手法及び各手法の問題点と対策についての調査

### 4.1 性能評価に内在する不確実性因子及び不確実性解析の必要性

本報告書のはじめに述べた様に、高レベル放射性廃棄物地層処分の性能評価には、評価の各段階で種々の選択（シナリオ、モデル及びデータ等）の可能性が複数存在しており、しかも評価対象となる時間・空間スケールの大きさに起因する観察結果や経験の不足のために、いずれの選択肢を採ることが適切かを判断する際に主観的な要素の介入を完全に排除することは極めて困難である。このことは、これら複数の選択肢からの問題の選択が一意的には行われ得ないことを意味し、つまり、性能評価の結果に何がしかの不確実性の影響が含まれることは不可避であると考えなければならない。

このことは、性能評価研究の各段階を通じて極めて重要な意味を持つこととなる。例えば性能評価の実施に先立ち設計、シナリオ解析、モデル開発及びデータ収集を行う準備段階においては、引き続いて行われる性能評価に含まれる不確実性をできるだけ小さくすることが課題であり、このために、それぞれの不確実性を減らすための課題（設計変更によって該当する不確実性の影響を低減する、保守的なモデルを用いることによって該当する不確実性因子が顕在化することを防ぐ、基礎的な研究を通じて現象理解そのものに内在する本質的な不確実性を低減する、等）の重要度分類を行うことが必要となる。性能評価研究が全体として多くの研究領域にまたがるものであることを考えれば、この点はプロジェクト全体の収束性を保つ上で極めて重要である。

また、実際に評価を行い、地層処分の安全性についてのある（暫定的なものであったとしても）結論を導く際には、その判断の根拠としての評価結果に含まれる不確実性の種類と大きさを付記することが必須である。これは、統計的な評価手法を用いる場合にはもちろん明示的に為されることとなり、また保守的な決定論的評価においても実際の被ばく線量が算出された決定論的な上限値を上回らないことの確信の程度（信頼性レベル）を示すことによって為されなくてはならない。

上記のいずれにおいても、まず第一に重要なことは、ある時点での現象理解やデータに基づき実施される性能評価の結果に含まれる不確実性の大きさを的確に把握するという作業が不可欠だということである。何故ならば、もしも、この様な不確実性の定量化という

行為がなにがしかの方法で行われなければ、不確実性を低減する方策を採ることも、あるいは性能評価自体の信頼性を客観的に議論しこれを許認可に反映することも不可能となるからである。不確実性解析とは、前述した種々の選択肢についてそれぞれの確からしさを表現する「重み付け」（主観確率、Fuzzy Membership Function、等。後述。）を施す（最も一般的に考えれば、「保守的」な単一値を選択することもimplicitではあるが、不確実性の見積もりに基づき離散的な「重み付け」を行った結果であると考えられる）ことにより、これら各選択肢のあらゆる組み合わせを包括した集合（つまり評価結果の分布）の期待値や信頼性上限等の統計的な情報（あるいは相当する定性的情報）を明らかにする作業である。

本章の検討は、

- 1) 以上の主旨に従って、これまでに開発あるいは適用されてきた不確実性解析の諸手法によって何が可能となり、また、どこに限界があるのかを調査する
- 2) この調査結果を踏まえ、第二次研究成果とりまとめに向けてこれまで本研究で実施してきた広義拡散方程式による手法の活用も含め、何を目標として研究開発を行っていくべきかを提案する

ことを目的としたものである。この様な目的のために、本節ではまず、以下に性能評価に内在する不確実性因子の種類をまとめることとする。

性能評価には、多様な不確実性のソースが含まれ、かつ、これらが非常に複雑な形態で互いに重複したりあるいは相関したりしているために、不確実性因子の分類を客観的かつ一義的に行うことは必ずしも可能ではない。しかし、不確実性への実際の対処という意味ではいくつかの因子が互いに区分され、それぞれ異なる手法で定量化が試みられているという歴史的な経緯があることも事実である。そこで、ここでは、この様な不確実性因子の取り扱い上の分類として[Robinson and Cooper, 1995]により提案されている以下の様な枠組みを考えることとする。

#### パラメータ不確実性

性能評価モデルに含まれる種々のパラメータは、様々な理由により評価に対する不確実性のソースとなる。この様な理由としては、以下が考えられる。

- ・当該パラメータの測定がこれまでに為されていない。
- ・測定結果が大きなばらつきを有している。
- ・評価に用いられるパラメータ値は、直接的に測定できない量についての推定値であるかあるいは空間的に平均化された数値である。
- ・パラメータ値を変動させる外力（外部事象）の存在や影響の程度が未知である。

### 統計的なパラメータ

性能評価には、以下の真に統計的なパラメータも含まれるものと考えられる。

- ・将来の気候変動
- ・ある特定の粒子（核種の分子、コロイド、等）がどの亀裂を通過するか

これらの統計的なパラメータの存在も、勿論、評価結果が一意に確定されない状態を作り出すものであり、従って不確実性因子として考慮される必要がある。

### シナリオ不確実性

ここではシナリオとは種々のプロセスや事象の組み合わせと時間的な順序づけのことでありと理解した場合、この様なプロセスや事象自体、さらにはその組み合わせと時間的な順序関係としては膨大なケース数が可能である。この様な多数の選択肢の存在は、対応する評価結果もまた多様な代替的可能性を有していることを示している。

### 概念モデル不確実性

評価対象とすべきシナリオが確定したとしても、これに対するモデル化の方法はやはり一通りには決まらない。モデル化とは、実際の現象が解析可能なものとなるよう、

- ・シナリオに含まれる諸プロセスあるいは事象のうち、処分の長期安全性への関与という意味で主要なもの以外を無視すること（単純化）
- ・主要なプロセスや事象を、ある仮定の下に数学的に表現すること（定式化）

を意味している。ここでもやはり、「主要」なプロセスや事象の取捨が一通りではなく、また数学的な表現のために必要となる仮定の置き方も一通りではないことは明らかである。

### サイト特性調査に付随する不確実性

これは評価モデル（特に核種移行モデル）への入力情報であるという意味ではパラメータ不確実性の一種と考えることができる。しかしながら、サイト特性は種々の特性値の空



間分布即ち位置の関数として表現される必要があり、また、実測データが解析領域全体を稠密に覆うものではあり得ないために、概念モデル不確実性に述べた単純化及び定式化を必要とする。このために、サイト特性調査に付随する不確実性は、通常の意味でのパラメータ不確実性と概念モデル不確実性とを併せ持つという意味から独立した区分として認識されるべきである。

### 近似誤差

性能評価の予測的な本質から、性能評価モデルはしばしば、元々そのモデルを定式化する際にその根拠となった測定データや観察事実に対応する条件から離れて（内挿あるいは外挿されて）適用されることがある。この様な状況では、本来実現象の近似である評価モデルの計算結果に無視し得ない誤差が含まれる可能性がある。また、この様な場合以外にも、計算効率を高める等の理由から評価モデル自体の単純化や近似が行われる場合もある。この様な場合にも、誤差は先験的には無視し得ず、不確実性因子の一つとして考慮される必要がある。

以上は、性能評価自体が一通りに確定されない理由、つまり評価そのものに含まれる不確実性因子を抽出したものである。しかしながら、同一の評価に対しても、実際には後述する種々の手法で定量化される不確実性の種類や大きさは異なったものとなる。つまり、不確実性解析の手法もまた、見かけの不確実性を左右させる可能性があり、評価の全体的な文脈によっては不確実性要因に含める必要があるかもしれない。

## 4.2 過去の性能評価研究における不確実性の取り扱い手法及び各手法の問題点

[Savage等、1995]によれば、過去の性能評価研究における不確実性の取り扱い手法は、以下の4種類に大別することが可能である。

- ・ 保守的評価、もしくは"worst case"の採用
- ・ 最良推定、及び"what if" という形式の解析
- ・ 感度解析
- ・ 確率論的手法

ここでは、上記のそれぞれについて概要をまとめるとともに、それぞれの手法の抱える

問題点を整理することとする。

#### 4.2.1 保守的評価

保守的な評価は、評価モデルに含まれる各パラメータについて「最も悲観的な」数値を組み合わせることにより、不確実性を含んだ評価結果の上限値を導出しようというものである。この様なアプローチは、シナリオやモデルの選択についても極く自然に延長・適用される（つまり、最も悲観的なシナリオあるいは概念モデルの採用）。

保守的評価の最大の短所は、

- ・通常、パラメータ（あるいはシナリオ、モデル）の変動幅には明確な上限値は存在せず、ある数値（選択肢）を「最も悲観的な」ものとして評価に用いた場合、必ず、「もう少し上はあり得ないのか？」あるいは「もう少し上だとどうなるのか？」という疑問が生じる。そして、これらの質問を否定することは厳密には不可能である。
- ・複雑な感度を有する評価モデルについては、どのパラメータの組み合わせが真に「悲観的な」つまり"worst case"となるか明らかではない場合が多い。

という点である。また、これに付随するものとして、保守的な評価結果は悲観的な仮定の組み合わせのために現実的にあり得べき地層処分システムの性能を必ずしも代表するものとはならないという傾向も考慮されるべきである。この傾向は、保守的評価を最適化やコストー便益解析に使用することが極めて困難であるということの意味している。

#### 4.2.2 最良推定

最良推定は、パラメータ値の変動範囲の中から最尤のものを選び出し、これを組み合わせることによって不確実性を包含する評価結果の中心値を見だし、更に変動幅を表現するために一部のパラメータについてある極端な（通常は上下限）値を仮定した変動ケースを計算することによって「もしもこの様な極端な状況が生じた場合どうなるか」（"what if"）を例示するというものである。また、前出の保守的評価と同様、このアプローチはシナリオあるいはモデル不確実性に対しても同様に適用可能なものである。

最良推定の最大の短所は、上記の極端な仮定に従う計算の位置づけが極めて不鮮明であるということである。これは、極端な仮定に従う計算のうちの一つでも許容できないほど大きな影響へとつながった場合に特に重要なものとなる。また、"what if"の仮定は、評価結果を見るものにあたかもこの様な極端な状況が実際に生じ得るかの様な印象を与える可能性もある。

#### 4.2.3 感度解析

ここで言う感度解析とは、

- ・評価結果の、あるパラメータに対する偏導関数を見い出すことを目標とした局所的感度解析
- ・各パラメータの変動幅全域に対して評価結果がどの程度変動し得るかを見いだすことを目標とした大域的感度解析

の両者を指すこととする。これらの共通の目標は、あるパラメータが単位量変動した場合に、対応する評価結果がどの程度変化するか即ち変化の傾き（=感度）を定量化することにある。

感度解析は、それ自体が単独で不確実性を定量化可能なものではないが、手法の正否の鍵となる必要計算ケースがパラメータ数に強く依存する確率論的手法（後述）の場合は勿論、上述した保守的評価及び最良推定においても、感度の大きい即ち重要度の高いパラメータのみを抽出して問題の実効的なサイズを減少させることによって不確実解析実施のための重要な準備段階となる。

現在の感度解析手法の短所は、以下の二つである。

- ・パラメータ間の組み合わせ等を考慮すれば、大域的な感度を見いだすために必要となる計算ケース数が非現実的に大きなものとなる可能性がある
- ・シナリオあるいはモデルに対する感度を定量化する際に、これらの集合での数学

的な「距離」の概念が定義されていないために、上述した意味での「単位量の変動」が定義できないために、異なるモデルあるいはシナリオ間の重要性を画一的に比較するための尺度を欠いている。

#### 4.2.4 確率論的手法

確率論的な手法は、評価モデルに含まれる各パラメータ（感度解析によって明らかに無視し得るとされたものは除くとして）に確率分布を与え、この分布から各点での確率密度に従った頻度でパラメータ値のサンプリングを行い、サンプリングされた各パラメータ値の組み合わせに対してそれぞれ評価結果を算出して、最後にこうして得られた多数の評価結果の集合に通常の統計的な規則を適用して期待値や信頼性上限値等を導出するというものである。サンプリングの手法としては、Simple Random Sampling (SRS)、Latin Hypercube Sampling (LHS) あるいはImportance Sampling (IS) 等が開発されている。これらの手法の詳細は勿論個々に異なるが、上記の期待値や信頼性上限値等を導出する手順はほぼ共通である。簡単のために期待値を例としてその導出過程をまとめると次のようになる。

ある評価モデルに含まれるパラメータ全体を一つのベクトルとみなし、これを  $p = (p_1, p_2, \dots, p_m)$  とし、パラメータ（ベクトル）値  $p$  に対応する評価結果を  $R(p)$  とする。また、 $p$  は確率密度関数  $F(p)$  を有するものとする。この時、上述した種々のサンプリング手法により  $N$  個の  $p_j$  を抽出し、各  $p_j$  を入力値として対応する評価結果  $R(p_j)$  を得る。この時、 $R(p_j)$  から全体としての期待値  $\hat{R}$  は次の様に与えられる。

$$(14) \quad \hat{R} = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N F(p_j) R(p_j).$$

現在の確率論的な手法の短所あるいは限界は以下の様にまとめることができる。

- 多くの場合、評価結果の分布は非常に強い非対称性を有するために、上記の手順で推定される統計的な諸量は必ずしもその確率論的な特性を良く代表するものとはならない。例えば上述した期待値の場合、多くの数値がこれよりもはるかに大きくまた同様に多くの数値がこれよりもはるかに小さい。つまり、ここで得られ

る期待値は、通常の正規分布等におけるその属性とは異なったものである場合が多い。また、サンプル数が少ない場合、この分布の非対称性のために期待値は過小評価される場合の方が多い。そして、期待値あるいは他の統計量推定値が収束するために必要となるサンプル数は極めて大きい。

- ・より基本的な事項としては、性能評価に含まれる不確実性への通常の意味での確率の適用性が否定的であるということがある。つまり、性能評価に含まれる不確実性は、パラメータ値自体が不確実なのではなく、多くの場合はこれらに対する専門家の理解が不確実なのであり、つまり、ここで言う「確からしさ」は厳密な意味での確率ではなくあくまで専門家の信念の強さを示す主観的な重みづけに過ぎない。そして、この様な主観的な重みづけには確率論（記述的確率の理論）は一般には適用できないことが知られている[Robinson and Cooper, 1995]。
- ・感度解析の場合と同じく、シナリオあるいはモデル不確実性の場合には、これらを含む集合に数学的な基本特性（「距離」、「完備性」、等）が欠けている（つまり、パラメータの場合の実数全体の集合 $R$ がそうであった様に、全ての選択肢を包含しかつ各選択肢の位置を同定できるような一つの数学的な空間が定義されていない）ために、現在の手法をそのまま拡張することはできない。より具体的には、確率が定義されるためには、各「選択肢」が一つの空間における「可測集合」となっている必要があるが、これは一般には満たされていない。また、シナリオ及びモデルの網羅性についても既知のもののみで十分であるという保証は得られない。

なお、性能評価に於ける確率論的な不確実性解析の具体例として、付録-5にNIREX-95の該当箇所をまとめる。

#### 4.3 課題のまとめ

前節に述べた各手法のうち、保守的な評価及び最良推定という従来の決定論的な評価が今後も行われる必要があることは議論を待たない。しかしながら、これらはいずれも評価に含まれる不確実性の種類や大きさを明確にするものではなく、従って評価結果の信頼性を客観的に示すことができるような代替的手法、より具体的には定量的な不確実性解析の手法開発に努めるべきであることもまた明らかである。本節では、この様な観点から、

第二次成果とりまとめに向けて定量的な不確実性解析の手法開発とその適用を進めていくとした場合、どの様な点が重要な課題となるかをまとめることとする。

#### 4.3.1 「確信の程度 (degree of belief)」の取り扱い

前節で既に述べた様に、性能評価に含まれる不確実性への通常の意味での確率の適用性には否定的な意見が多い。性能評価に含まれる不確実性は、パラメータ値自体が不確実なものではなく、多くの場合はこれらに対する専門家の理解が不確実なのであり、つまり、ここで言う「確からしさ」は厳密な意味での確率ではなくあくまで専門家の信念の強さを示す主観的な重みづけに過ぎない。そして、この様な主観的な重みづけに確率論を用いた場合、以下に説明する様なリスク希釈と呼ばれる現象が生じることが知られている [Robinson and Cooper, 1995]。

簡単のため、2回の統計的なサンプリングによりそれぞれ異なる入力データセットが作成され、これらについての解析を実施した結果下図に示す様な被ばく線量の経時変化がそれぞれ算出されたとする。

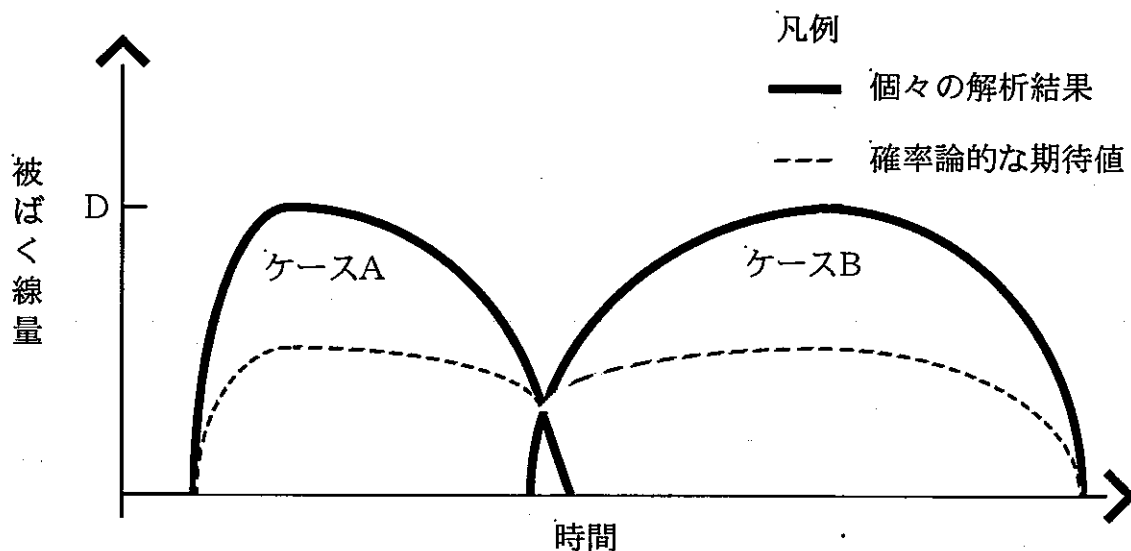


図 4.3.1-1 リスク希釈の例

上図で、各ケースにおいて被ばく線量にピークが現れる時刻はそれぞれ異なるがピーク値そのものは同一であると仮定する。つまり、いずれのケースが実際に生じるにせよ、最大被ばく線量Dが生じるものと考えなくてはならない。これに対して、確率論的な評価の結果として得られる最大被ばく線量の期待値は、同図に点線で示した様に明らかにD/2で

ある。つまり、確率論的な評価では、不確実性のためにかえって評価結果が小さくなるという状況が生じ得る。これがリスク希釈の端的な例である。より一般的には、次の二つの量のうち  $m$  が  $M$  よりも著しく小さくなる様な場合、確率論的な評価によるリスク希釈が生じたという。

$$(15) \quad \begin{aligned} m &= \max_t \left\{ \int_p D(t; \pi) d\pi \right\} \\ M &= \int_p \max_t \{ D(t; \pi) \} d\pi \end{aligned}$$

この様なリスク希釈が生じることの背景には、本来、多数回の統計的な試行に対して適用されるべき（記述的な）確率を、事象自体は決定論的につまり一通りに定まるがそれに対する我々の理解が不確実であるために生じる性能評価の不確実性に適用することの矛盾がある。また、リスク希釈と本質的には同じ理由により生じるものとして、確率の分割の問題がある。これは、ある確率  $Pr$ /年以下のシナリオは評価対象から除外するという様な裾切り値が指定されている場合に特に顕著になるものであるが、例えば火成活動による処分場の破壊といったシナリオが確率  $2Pr$ /年と推定されていたとすると、もしこのシナリオを該当する火山の位置、種類、事象の起こる時間帯といった指標によって同等に確からしい3つのサブシナリオに分割できたとすると、いずれも生起確率は  $Pr$ /年を下回り評価から除外できることとなってしまふ。この様なパラドクスは、本来一通りに定まるべき将来に対して我々の無知の故に生じた仮想的な代替案を考える場合に、そもそも通常確率論において行われる様な確率の加減乗除が許されないものであることを示唆している。

以上をまとめると、上述したリスク希釈等の問題を回避することが今後の定量的な不確実性解析の手法開発と適用のための重要な課題として挙げられることになる。そしてこのためには、記述的な確率に代わって、専門家の主観的な「確信の程度」を適切に表現し得る尺度を導入し、また、「各ケースの結果を合計してから個数で割る」という方法に代わって多数の計算結果から本来一通りしかあり得ない将来像を導出することを正当化できる様な新たな算法を考えることが必要となる。

#### 4.3.2 パラメータ以外の不確実性の取り扱い

前節の整理において、これまでに開発あるいは適用されている定量的な不確実性解析手

法の問題点として、主観的な「確信の程度」と並んで基本的と考えられるものはパラメータ以外の不確実性の取り扱いである。これを具体的に見るために、ここでは、まずパラメータ不確実性の場合の解析の手順を整理し、これに基づいてパラメータ以外の不確実性の取り扱いではどのような点が問題となるかを見ることとする。

パラメータに関する不確実性解析の手順を以下に示す。

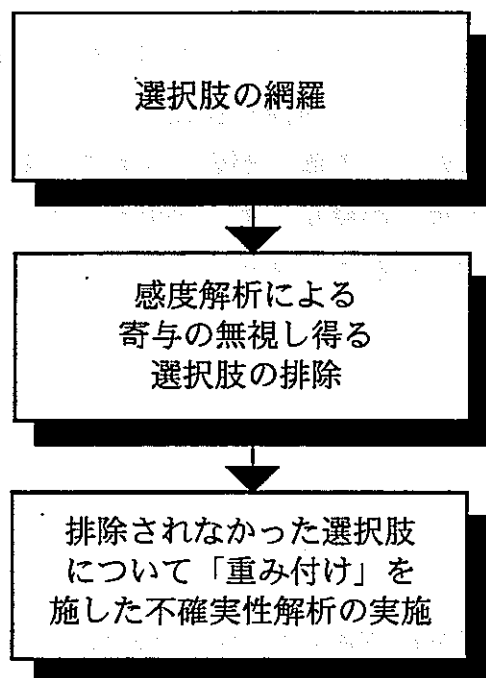


図4.3.2-1 パラメータについての不確実性解析の手順

さて、以下に図4.3.2-1に示した不確実性解析の3つの段階に則して、パラメータ以外の不確実性に対して何が問題となるかを示すこととする。

- (1) 上図で、第一のステップである「選択肢の網羅」は、パラメータ不確実性の場合には通常は意識されない。これは、選択肢つまりこの各パラメータの数値が実数空間  $R$  (多くの場合はその部分空間である正の実数の集合) に包含されており、つまり有限個のパラメータの組み合わせを考える場合には、これらは  $n$ 次元ユークリッド空間  $R^n$  に含まれていることが明らかである。しかしながら、シナリオあるいは概念モデルの選択肢を考える場合に、パラメータの場合の実数空間にあたる



ものが何であるかは直ちに明らかではない。従って、「全て」のシナリオあるいは概念モデルという概念自体も定義されない。このことは、シナリオやモデルのリストを作る際に「他には本当はないのか？」という問いに文字どおり答えることを不可能とする。そこで、通常、この様な質問は「他に（これまでに世界中のいかなる機関で研究された例は）本当はないのか？」という解答ができるものにすり替えられることとなる。しかしながら、この改訂された問いに答えたからと言ってそれが本来の意味での網羅性を意味するものではないことは明らかである。

(2) パラメータの不確実性の場合、第二の段階である感度解析では、これも通常は選択枝の含まれる実数空間が我々になじみ深く自然なものであるために意識されないが、複数の選択枝の間に何らかの「距離」が定義されている。感度解析が、感度すなわちある属性を変動させた場合の結果の変化の割合であることを考えれば、そもそも変動させる属性について「変動の大きさ」を測ることが必須であることは明らかである。

(3) モデルやシナリオが適合するか否かもまた本来は決定論的なものであり、これらに重み付けをする場合に従来確率論を用いることが種々の問題につながることは既に述べた通りである。

以上をまとめると、パラメータ以外の不確実性の取り扱いに関しては、パラメータの場合の $R^n$ に該当する空間を数学的に明確なものとするのが重要な課題であることがわかる。また、上記の(3)の段階を考えれば、この空間に含まれる各要素に専門家が重みを付与できるものであること、特に上述した議論の過程から明らかではあるが、既存のモデルあるいは既知のシナリオ以外についても何らかの形で専門家がそれぞれの確信の程度を評価できるものであることが必要である。

#### 4.4 これまでの不確実性解析の問題点に対する代替的手法

4.2で述べた様に、これまでに開発されたいずれの手法も、全ての種類の不確実性因子に対して正確かつ効率的に不確実性解析を行うという目標を十分に達成し得るものではない。そこで、これらに対する代替的な手法の開発が近年活発に行われている。以下に、それぞれの代替的手法をまとめることにより、前節に述べた各課題に対して、今後の研究開発においてどの様な可能性が期待し得るかを示すこととする。

#### 4.4.1 ファジー理論に基づく解析

CECの実施した性能評価の不確実性解析に関するレビュー (MUNVAR; Modelling with UNcertainty and VARIability プロジェクト) では、確率論に代わるものとしてファジー理論の適用可能性に注目すべきであることが明らかとなった[Robinson and Cooper, 1995]。また、古典的な確率に代わってファジー理論におけるメンバーシップ関クションをパラメータ値の確からしさに対応した「重みづけ」に用い、メンバーシップ関クション間の演算をファジー算法によって行う解析コードであるQUEST及びMORTALがいずれもCECの委託研究として英国インテラインフォメーションテクノロジー社によって開発されている。ここでは、まず基礎となるファジー理論を説明した後に、性能評価への具体的な適用方法としてMUNVARプロジェクトで提案されているアプローチについてまとめる。また、最後にこの様な代替的な手法を用いた場合に確率論的な評価の有する問題点がどの様に解消され得るかについて述べることにする。

##### (1) ファジー集合及びファジー論理

「1より大きく2より小さい実数全て」や、「ある部屋の内部に居る全ての人々」、といった集合は、要素が全て具体的に列挙されているかあるいは帰属性の定義が明確に為されているクリस्प (crisp) な集合の例である。これに対して、「背の高い人々」といった帰属性の定義は曖昧なものであり、ある人物を指して「この人は「背の高い人々」に含まれるか」という質問を多くの人に尋ねれば、赤ん坊がこれに該当しないことや逆に身長2mを超えるバスケットボール選手がこれに該当することといった極端な例については全員の合意が得られるだろうが中間的な領域では解答はyesとnoとに分かれるであろう。これは、ファジーな集合の例である。

もう少し丁寧にファジー集合を定義すると次の様になる。まず、各要素の帰属関数 (メンバーシップ関クション) を、「 $x$ が、 $X$ という共通の属性によって定義される集合 (簡単のためこの集合自体も $X$ と呼ぶこととする) に帰属することに疑いの余地が無い場合、メンバーシップ関クション $x(X)=1$ とし、反対に帰属しないことに疑いの余地が無い場合、 $x(X)=0$ とする。そして、 $x(X)$ は $(0,1)$ の任意の値を採ることができる。」により定義するものとする。ここで、実際上メンバーシップ関クションを測る方法としては、例えば上述した例の様に多数の人に質問をして「帰属する」と答えた人数の割合を計

算することが考えられる (voting model と呼ばれる)。さて、この様なメンバーシップ  
 ファンクションを用いれば、 $X$ がファジー集合であるとは、 $\{x \mid 0 < X(x) \leq 1\}$ つまり定義  
 $X$ を満足するという認識の度合いが零ではない様なもの全ての集合のことである。これに  
 対して、 $X$ がクリスプな集合であるとは、 $\{x \mid X(x) = 1\}$ つまり定義 $X$ を満足するという認  
 識の度合いが1であるもの全ての集合のことである。具体的には、「おおよそ1である様  
 な実数全体」という集合について、例えば下図に示すようなメンバーシップファンクショ  
 ンによってファジー集合を定義することができる。

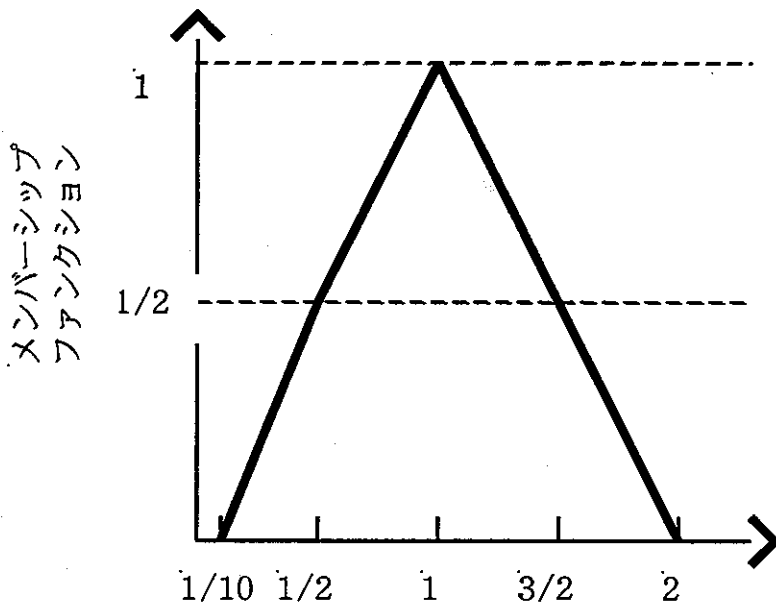


図 4.4.1-1 「おおよそ1の実数」に該当するファジー集合  
 とメンバーシップファンクションの例

上図の例では、1のみがメンバーシップファンクション1であるクリスプな意味での帰  
 属性を有している。これに対して、ファジーな観点からは1/10から2までの全ての実数は  
 帰属性が零ではなく従ってファジー集合の要素と考えられる。また、逆に帰属性を指定す  
 ることも可能である。例えば、上図でメンバーシップファンクションが1/2以上であるも  
 のという指定をすることにより、ファジーな部分集合  $(1/2, 3/2)$  が定義される。なお、  
 この例と同様にして、「高い透水性を有する母岩」、「緩慢な気候変動」あるいは「通常  
 の圧力範囲でダルシー則の適用可能な媒体」といったファジー集合を定義することが現在  
 でも可能である。

ここで、確率の場合と異なり、全ての要素についてのメンバーシップファンクションを足し合わせても（この例の場合は1/10から2まで積分しても）1になることは保証されていないことに注意を要する。後述する様に、性能評価で対象としているのは一つの処分システムの将来であり、多数の処分システムを作ってその平均をとろうとしている訳ではない。つまり、我々の直面している不確実性はサイコロを振る様な真に統計的な試行によるものではなく、本来一通りに定まるべき将来についての理解が不足していることに起因するものであり、この様な場合には全ての選択肢についての「確からしさ」の和が1になる必要はない。

さて、性能評価あるいはもっと具体的にパラメータについての不確実性解析という実際上の作業を例として言えば、上のメンバーシップファンクション及びこれと対応するファジー集合の概念が定義されたことにより、評価モデルに含まれる各パラメータについてメンバーシップファンクションが与えられたファジー集合が定義されたこととなる。次に必要となることは、確率論的な解析の場合と同じように、各パラメータについてある数値をサンプリングして一つの入力データセットを作ることである。ここで問題となるのは、それぞれのパラメータ値がそれぞれの帰属するファジー集合の中であるメンバーシップファンクションを有しているとして、この入力データセットに基づき算出される一つの解析結果は、「解析結果のファジー集合」の中でどの様なメンバーシップファンクションを与えられるべきかということである。この問題に答えるためには、ファジー算法と呼ばれる複数のメンバーシップファンクション間の演算規則を作る必要がある。

ファジー算法の中で最も一般的なものは以下のMin-Maxルールと呼ばれるものである。まず、 $n$ 個のパラメータを有する関数  $f = f(x_1, x_2, \dots, x_n)$  を考え、各パラメータについてメンバーシップファンクション、つまりパラメータ  $x_i$  が  $s_i$  という数値を採ることの「確信の程度」、が  $I_{x_i}(s_i)$  で与えられているものとする。この時、 $f$  が  $f(s_1, s_2, \dots, s_n)$  となるためには、全ての  $i$  に対して  $x_i = s_i$  が成立していなければならない。これらが同時に成立することの「確信の程度」は、 $I_{x_i}(s_i)$  のうち最も小さいものに等しいという仮説がMin-Max原理のMinの部分である。次に、 $If(S)$  つまり関数  $f$  による評価の結果が  $S$  という値を採ることのメンバーシップファンクションを考える。一般に、 $f$  の値が  $S$  となる様なパラメータ値の組み合わせは複数存在するものと考えられる。つまり、 $s^{(k)} = (s_1^{(k)}, s_2^{(k)}, \dots, s_n^{(k)})$ , ( $k=1, 2, \dots, m$ ) がいずれも評価結果  $f = S$  をもたらすものとする。この時、関数  $f$  による評価の結果が  $S$  という値を採るためには、上記の  $s^{(k)}$  のうちのどれか

一つが成立すれば良く、そこで、 $I_f(S)$  を各  $s^{(k)}$  についてのメンバーシップファンクションのうち最大のもので仮定するというのがMin-Max原理のMaxの部分である。以上を併せると、 $I_f(S)$  についてのMin-Max原理に従うファジー算法は、以下の様なものとなる。

$$(15) \quad I_f(S) = \max_{\substack{(s_1^{(k)}, s_2^{(k)}, \dots, s_n^{(k)}) \\ \text{such that } f(s_1^{(k)}, s_2^{(k)}, \dots, s_n^{(k)}) = S}} \{ \min \{ I_{x_1}(s_1), I_{x_2}(s_2), \dots, I_{x_n}(s_n) \} \}$$

ここで、ファジー理論に基づく評価では、確率の加減乗除という通常の算法に代わってメンバーシップファンクションへのMin-Max原理の適用という算法が採られるために、前節で述べたリスク希釈の例題で平均をとるという操作によりピーク値が半減する状況は生じないことが保証される（より具体的には、ファジー理論では図4.3.1-1の点線ではなくケースAとBの包絡線が評価結果となる）。また、同じくMin-Max原理を適用する限り、一つのシナリオを複数のサブシナリオに分割した場合に少なくとも一つのサブシナリオは元のシナリオと同じメンバーシップファンクションを有していなければ成らない（あるシナリオのメンバーシップファンクション=全てのサブシナリオのメンバーシップファンクションの最大値）こととなり、従って分割によってメンバーシップファンクションが減少しないことも明らかである。

## (2)性能評価及び不確実性解析への適用

以下に、MUNVARで提案されているファジー理論の不確実性解析への適用方法をまとめる。まず、ファジー理論の原則を整合的に評価に適用するために、基準自体を次の様に解釈する必要がある。

「地層処分の影響により将来の世代がある線量 $\chi$ 以上の被ばくを受けることは決してない  
 ということ、 $\zeta$ 以上の確信を以て言うことができること。」

この文章は、確率論的な観点に対応した「地層処分の影響により将来の世代がある線量 $\chi$ 以上の被ばくを受けないという確率が $\zeta$ 以上であること。」とは全く異なるものであるということに注意を要する。前者はただ一度の決定論的な事象に対する予測の確信の度合い（degree of belief）を言っているのに対して、後者は地層処分の帰結を統計的な事

象と捉え、同様の試行を多数回繰り返した場合に全試行のうち $\frac{1}{2}$ 以上の割合は所定の線量以下となることを言っている。

さて、このような安全基準の解釈に対応して、以下の様な手順（MUNVARで提案されていたものを、性能評価の反復的な実施に関する箇所を省いて単純化してある）で性能評価を組み立てる。

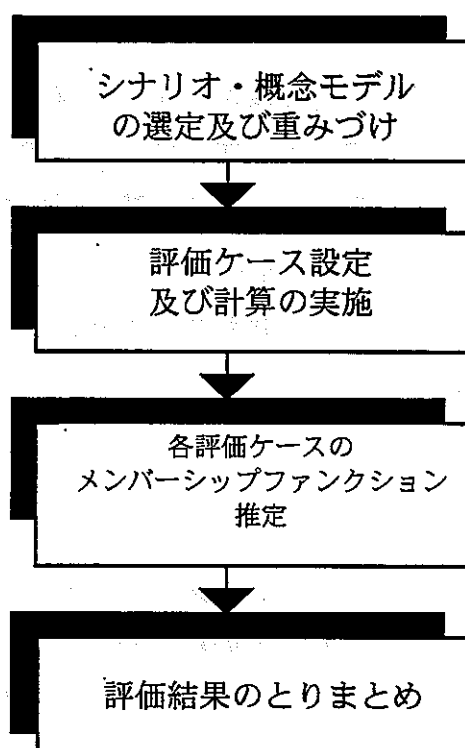


図4.4.1-2 MUNVARプロジェクトで提案されたファジー理論に基づく性能評価及び不確実性解析の手順

各ステップで行う具体的な作業は次の通りである。

① シナリオ・概念モデルの選定及び重みづけ

種々のFEPsの組み合わせとして表現されるシナリオ及びこれに対する概念モデルのオプションのリストを離散的なファジー集合として捉え、それぞれの「確からしさ」についての専門家の意見に基づき各シナリオに対してメンバーシップファンクションを付与す

る。専門家の意見聴取の方法としては、

- ・多数の専門家に同じ質問を繰り返しyes かnoかの二者択一の返答を要求する。この結果に基づき、voting modelによりメンバーシップファンクションをyesと答えた専門家の割合として定義する方法
- ・単一あるいは少数の専門家から成るグループに質問し、結果を彼らの確信の度合いとして直接(0,1)のメンバーシップファンクションとして返答することを要求する方法

の二つが考えられる。これら二つは、確率論における議論と全く同様に ergodicity が仮定できる場合にのみ一致するものである（エルゴード仮説は常に論争の種ではあるが、ファジー及び確率論に関して共通の問題であるためここでは詳細には触れない）。また、結果として得られたメンバーシップファンクションが $\mu$ よりも小さいシナリオについては、結果の如何を問わず、このシナリオについての評価結果のために地層処分の安全性が基準に適合しない可能性は無いために無視される。

## ② 評価ケース設定及び解析の実施

次に、①で排除されなかった各シナリオと概念モデルの組み合わせについて全ての不確実なパラメータにメンバーシップファンクションを①と同様の手法で付与する。そして、確率論的な解析の場合と同様、各パラメータのファジー集合から特定の数値をランダムにサンプリングしてこれを入力データセットとした解析を実施する。そして、算出された結果のメンバーシップファンクションは、サンプリングされた各パラメータ値のメンバーシップファンクションのうち最小のものと等しいとする。この様にして得られたあるシナリオ・概念モデルXにおける線量算出結果Sとそのメンバーシップファンクション $I_X(S)$ との関係を下図に例示する。なお、①と同様の理由により、各パラメータ値のファジー集合のうちメンバーシップファンクションが $\mu$ よりも小さいものについては予めサンプリングの対象から除外することが正当化される。

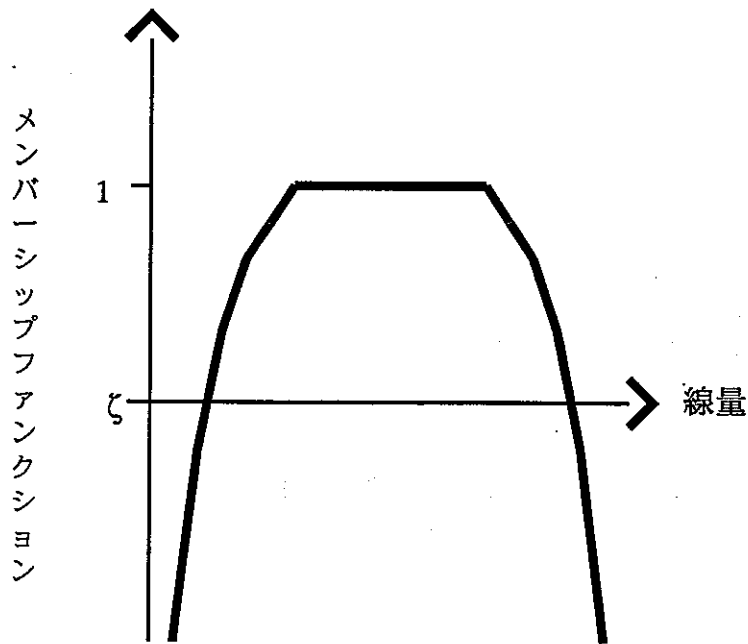


図4.4.1-3 あるシナリオ・概念モデルによって算出される被ばく線量のファジー集合及び条件付きメンバーシップファンクション

③ 各評価ケースのメンバーシップファンクション推定

②で算出した各線量算出結果のメンバーシップファンクションは、あるシナリオ及び概念モデルが正しいとした場合のいわば条件付きのメンバーシップファンクションであった。従って、複数のシナリオや概念モデルを考慮した評価を実施するためには、以下の方法でこの制約を取り払う必要がある。

$$(16) \quad I(X, S) = \min \{I_{(X)}(S), I(X)\}$$

但し、 $I(X, S)$ ; シナリオ・概念モデル $X$ が適合し、かつ、線量 $S$ が生じることのメンバーシップファンクション

$I_{(X)}(S)$ ; シナリオ・概念モデル $X$ が適合するという条件付きでの線量 $S$ が生じることのメンバーシップファンクション

$I(X)$ ; シナリオ・概念モデル $X$ が適合すること自体のメンバーシップファンクション



(16)の調整により、図4.3.1-3は次の様に改訂される。

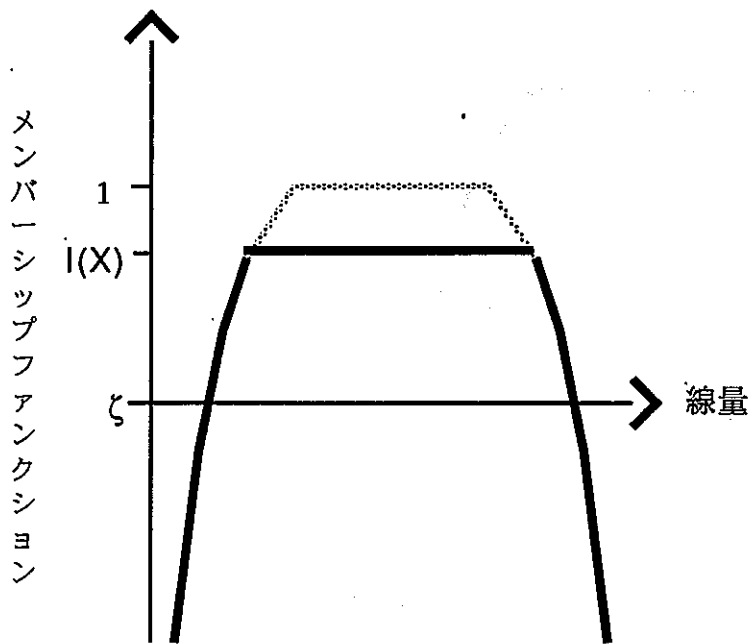


図4.4.1-4 あるシナリオ・概念モデルによって算出される被ばく線量のファジー集合及びメンバーシップファンクション

#### ④ 評価結果のとりまとめ

②及び③に述べた方法により各シナリオ・概念モデルXによって算出される被ばく線量のファジー集合及び対応するメンバーシップファンクション $I(X, s)$ が得られたとして、次に必要となるのは全てのXについての結果を統合した総合的な線量評価結果についてのメンバーシップファンクション $I(S)$ を算出することである。ここでは、Min-Max原理のうちMaxの部分が適用可能であり、 $I(S)$ は次の様に与えられる。

$$(17) \quad I(S) = \max_x \{I(X, S)\}$$

つまり、各被ばく線量Sについて、排除されなかった全てのシナリオ・概念モデルXをスキャンして最大のメンバーシップファンクションにより総合的な結果のメンバーシップファンクションを定義する。この操作により、最終的に図4.3.1-5の様な不確実性の見積もりを含んだ評価結果が得られることとなる。

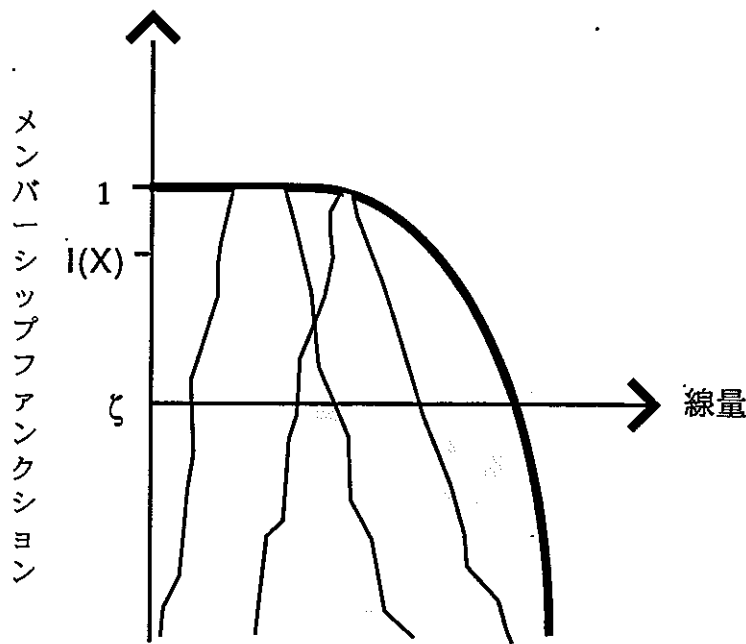


図4.4.1-5 最終的な評価結果のファジー集合及び  
メンバーシップファンクション\* (細線は個別のシナリオ・概念  
モデルについてのメンバーシップファンクションに対応)

\*注：この図ではある線量を上回ることの確からしさについてのメンバーシップファンクションを例としているため、原則として単調減少である。

#### 4.4.2 シャドウモデル

シャドウモデルは、4.3に述べたパラメータ以外の不確実性を取り扱うために、シナリオあるいはモデルの全ての選択肢を包含した空間を数学的に明確なものとし、空間内の各点（それぞれが一つのシナリオあるいはモデルに対応する）間の距離を定義した上で、この空間の中で物理的に不可能なものを排除することによって性能評価で考慮すべきモデルあるいはシナリオの占める領域を明確にするというものである[Takase, Grindrod and Crompton, 1996]及び[Grindrod and Takase, 1995]。このアプローチは、ある意味では通常モデリングとは正反対のものである。つまり、通常モデリングでは物理的に最尤と考えられるものを数学的に定式化していくのに対して、シャドウモデルではまず全空間を定義し、その中で明らかに不自然なものを切り捨てていって残ったものを全て「否定できない」候補とする。換言すれば、シャドウモデリングにおいては「疑わしいもの」は全

候補の中に残されるが、通常のモデリングではこれらは切り捨てられる可能性が強い。従って、網羅性という観点のみで言えば明らかにシャドウモデリングの方が優れていると言える。

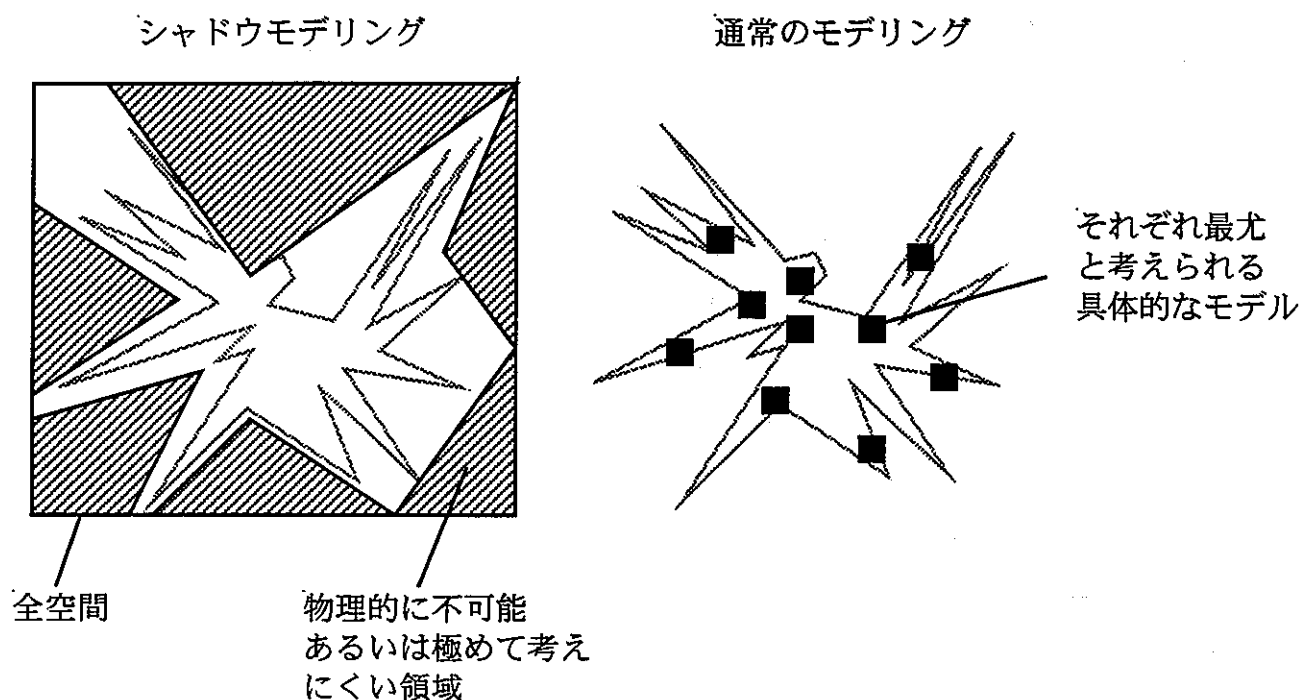


図4.4.2-1 シャドウモデリングと通常モデリングにおける方法論の概念的な比較

シャドウモデルにおける全空間の明確化は、対象とする問題に応じてそれぞれ為されなくてはならない。例えば、ニアフィールドにおける核種の分子拡散による移行を考えた場合、次の様な種々のクラスの問題が考えられる。

1) 全ての化学反応が瞬時平衡にあり、かつ、環境条件が時間・空間的に一定である場合

この場合には対応する広義（平均）拡散係数  $\alpha$  は全濃度  $C$  のみの関数であり、従ってこの問題設定に対応した全てのモデルは  $\alpha$  を  $C$  のある範囲  $(0, \chi)$  で定義された関数  $\alpha(C)$  の集合の作る空間に含まれることとなる。ここで、数学的にもう少し厳密に言えば、関数  $\alpha(C)$  を連続関数とすれば対応する関数空間はバナッハ空間となり、有限個の不連続点を許容するのであればヒルベルト空間となる。

2) 全ての化学反応が瞬時平衡にあり、かつ、一定の環境条件下での $\alpha$ の $C$ への依存性が既知である場合

この場合には、1)とは逆に環境条件の時間・空間的な変化に対応した広義拡散方程式の見積もりが問題となる。例えば、全濃度 $C$ の関数としての $\alpha$ が、環境条件に依存した $n$ 個のパラメータ $a_i, i=1,2,\dots,n$ を含めて $\alpha(C, a_i)$ と表現される場合、ベクトル値関数 $\mathbf{a}=(a_i)$ が位置と時間の関数 $\mathbf{a}=\mathbf{a}(\mathbf{x}, t)$ として上記の関数空間に含まれる。

3) 全ての化学反応が瞬時平衡にある一般の場合(1)と2)の組み合わせ)

この場合には、 $\alpha$ は $\alpha(C, \mathbf{x}, t)$ という全濃度、位置、及び時間の一般の関数として表現した非常に広範な関数空間に含まれるものとなる。

4) 瞬時平衡が成立しない場合

この場合には、 $\alpha$ は $(C, \mathbf{x}, t)$ が定まれば一意に定まるという保証はなく、広義拡散係数の観点からは $\alpha$ は統計的な量として捉えられなくてはならない。従って、

$$\alpha = \bar{\alpha}(C, \mathbf{x}, t) + \varepsilon$$

という様に、統計的なノイズ $\varepsilon$ を含めて表現することが必要となる。そして、対応する関数空間は3)にさらにノイズを含めたものとなる。

シャドウモデルにおいて問題となるのは、該当しない領域の排除が適切に行われない場合、上述した各クラスの関数空間(それぞれ、本来は無限次元の空間である)の大きさを反映して取り扱うべきケース数が膨大なものになってしまうという点である。勿論、感度解析によって感度の小さい領域を排除していくという作業は可能である。しかし、感度解析はそれぞれのケースについて一旦は計算を実施し、その結果に基づき取舍を判断するというものであり、対象とすることができるケース数にもおのずと限りがある。従って、シャドウモデルを真に実用的なものとするためには、巨大な関数空間の中から物理的に不可能なものあるいは専門家の知見に照らして不自然なものを体系的かつ効率的に切り捨てていくための具体的な方法論を明確化することが課題である。

## 4.5 今後の不確実性解析の目標及び研究計画の提案

### 4.5.1 不確実性解析の目標

4.4の内容をまとめれば、パラメータ以外の不確実性についてシャドウモデルを用い、網羅された性能評価に含まれる選択肢（シナリオ、モデル、及びパラメータ）の全てに対して専門家の確信の程度をファジー理論に基づいて付与すれば理論的には、

- ・性能評価に含まれる種々の不確実性因子を包括的に考慮しそれぞれに起因する評価結果の不確実性の大きさを定量化し、
- ・これらの不確実性の存在を前提として、地層処分の安全性にかかる判断を支持する性能評価全体としての結果を提示する、

という不確実性解析の所定の目標を達成することが可能であると考えられる。しかしながら、実施上は後述する様にいくつかの課題が残されており、第二次とりまとめに向けて成果を集約するというタイムスケールの中ではこれらの現実的な制約を勘案した目標設定を行うことが重要と考えられる。

#### 1) 取り扱いケースについての目標設定

上記の観点から実現可能性の高い目標設定を行う上でまず第一に考慮すべきことは、シャドウモデルによるアプローチを用いた場合、想定される全ての種類の不確実性因子を取り扱うことが可能になることの代償として、解析対象とする空間の次元（より具体的に言えばシャドウモデルに含まれるパラメータ数）は従来の方法に比して飛躍的に高くなるということである。これに対して、勿論、実際に解析を実施しその結果を性能評価に反映することができるものの数は限られている。このギャップを低減するためには、通常のシナリオ解析の場合と同様、screening 及び lumping という操作が有効と考えられる。screening とは、最も一般的には、発生する可能性が極めて低いあるいは発生したとしても生じる影響が無視し得る程小さいという理由で定量的な解析の対象とする必要のないケースを性能評価の諸過程の中でできるだけ早期に、体系的に排除するというものである。また、lumping は、発生機構及び長期的安全性へ影響を与える機構の両者において

類似した複数のケース群を一括することにより、評価上真に差別化することが必要なケース（群）の数を低下させるものであると理解することができる。さて、シャドウモデルを用いるアプローチにおいてこの様なscreening及びlumpingはどの様に実施できるであろうか。この点を明確にすることが、上述した現実的な目標設定という意味では第一に重要と考えられる。以下に、シャドウモデルを用いた解析のうちscreening及びlumpingを実施すべき局面を抽出する。

- ・シャドウモデル作成時の screening

シャドウモデルを作成する作業は、4.4.2に述べた様に、i) 全空間の定義、ii) 全空間のうち物理的に矛盾するものの排除、iii) 残された領域を包括的にカバーする様な関数族（シャドウモデル）の指定、という3つの段階から成るものである。このうちのii)が一般的な意味でのscreeningに対応することは明らかである。

- ・感度解析実施時のlumping

5.の例題にも見られる様に、シャドウモデルを用いて解析を実施した場合、得られる結果は幅広い範囲に一様に分布するのではなく群（クラスター）を形成する場合が多い。5.に述べる様な方法でこれら各クラスターに含まれるケース間に共通点が確認されれば、個々のケースの代わりにクラスターを単位としてこれ以降の不確実性解析を実施することが可能となる。これは、連続的に（従って無限に）存在し得る計算ケースを有限個の塊（lump）に同値類別するものとして極めて有用である。

- ・クラスターのlumping後のscreening

シャドウモデルに含まれる各パラメータあるいは特定のパラメータレンジは、シャドウモデル作成時には数学的な機能しか付与されていないが、定量的な解析さらにはクラスター分析と共通点の確認が行われた後には、後述するように個々のクラスターを単位としてより詳細な解析を行うことによりその現象論的な意味も見いだされることとなる。従って、この時点で後述するファジー理論による不確実性解析（より具体的に言えば、確信の程度に基づく「重み」の付与）に先立ち、再度 screening を実施することにより物理的に意味を有さないものを排除することが可能である。

## 2) メンバーシップファンクションの付与についての目標設定

第二次とりまとめに向けての目標設定を行う上で次に考慮すべき点は、再び、性能評価

において各選択肢に付与する重み（つまりファジー理論の場合はメンバーシップファンクション）は専門家の確信の程度であり、記述的な確率ではないということである。特に重要な点は、専門家の反応は問題に対する理解の程度あるいは質問の仕方に依存したものであるということである。従って、二人の専門家が一つのクラスターについて互いに相容れない意見を述べた場合、直ちに1/2というメンバーシップファンクションを与えるのではなく、質問が正しく理解されているか、あるいは両者が最新の情報を共有できているか等について議論を行い対立する意見が一つに収束する可能性を探ることが必要である。

メンバーシップファンクションの付与においても一つ重要な点は、まずクラスターを単位としてメンバーシップファンクションを設定することである。このことにより、取り扱うケースは減り不確実性解析の実施可能性が高まることとなる。また、性能評価で答えるべき問いが「地層処分は安全であるか否か」というものである以上、あるクラスターに属する全てのケースが安全である場合あるいは不安全である場合、これらのクラスターについてさらにその内部における詳細なメンバーシップファンクションの付与を行う必要はない。逆に言えば、安全か不安全かの境界にまたがる様なクラスターについてのみ、パラメータレベルでのメンバーシップファンクションの付与を行えば良いということになる。

最後に、メンバーシップファンクションはあくまで現象についての専門家の知見を基盤とするものであるのに対して、シャドウモデルは数学的に構成されたものであり、両者の間には本質的なギャップが存在するという事に注意を要する。従って、上述した screening あるいはメンバーシップファンクションの付与を行うためには、あるシャドウモデルが物理的にどの様な状況に対応するものであるかを個別具体的な解析により補佐することが必要と考えられる。ここで重要な点は、この様な詳細な解析は、上記の安全側と不安全側の境界にまたがるもの以外のクラスターでは各クラスターの代表点をとることで十分であり、また、安全側と不安全側の境界にまたがる様なクラスターにおいても境界の近傍に位置する限られたケースのみを対象とすれば良い。

以上をまとめれば、今後、第二次とりまとめに向けての不確実性解析の目標は次の様に設定される。

「ニアフィールドにおける地下水を媒体とした核種移行について、物理的に矛盾した設定のみを排除した全ての可能性（シナリオ、モデル、パラメータ）をシャドウモデルとして考慮し、対応するシャドウモデルに含まれるパラメータ値を広範に変動（統計的サンプリ

ング等により) させて感度解析を実施しこの結果からクラスター分類を行う。次に、各クラスターについて少数の代表ケースを選定し個別に具体的な解析を行ってそれぞれの現象論的な意味を明確にした後、安全側あるいは不安全側に完全に含まれるクラスターについてはクラスターを単位として、また、境界にまたがるようなクラスターについてはさらに詳細な分割を含めて、それぞれの生起の確からしさを専門家の確信の程度として定量化する。この際、対立する意見については収束の可能性を調査し、対立の原因が本質的な知見の欠如(=不確実性)で有る場合にはそれぞれの専門家の確信の程度をメンバーシップファンクションとして用い、これをファジー算法により統合して不確実性を含めた性能評価結果を提示する。」

#### 4.5.2 研究計画

今後の不確実性解析に関する全体的な研究開発の進め方としては、前節に述べたアプローチに基づき、一貫した不確実性解析の演習を実施することが方法論全体としての確立を図る上で最も重要と考えられる。また、この様な演習は一過性のものではなく、反復的に繰り返していくことにより方法論の熟成を行う必要がある。この様な意味からは、当初はプロジェクト内部の関係者の範囲に於いて一通り解析・評価の過程を全て体験し問題点の抽出を行うことが肝要と考えられる。特に、専門家との間のインターフェイスについては、この様な演習の経験に基づきその基本的な仕様を明らかにすることが必要である。そして、ここで抽出された問題点に対し長期的に取り組む必要のあるものについては第二次とりまとめ以降も含めた研究開発計画を策定し、それ以外のものについては解析方法の改良や追加を行った後、外部の専門家を含めた評価を行い、第二次とりまとめにむけての成果としていくことが望ましい。

また、個別の研究課題としては、以下のものが挙げられる。

##### 1) 1次元シャドウモデルの拡張

核種移行機構が分子拡散に限定されている現在のシャドウモデルを移流を含めたものに拡張すること

##### 2) クラスター分析及び各クラスターの特徴付けの手法開発

##### 5. 参照



3) シャドウモデルの物理的な意味を明確にするための詳細モデルの開発

4) メンバーシップファンクションにより重み付けを施した解析結果をファジー算法により統合するためのプログラム開発

## 5. 単一崩壊連鎖を例とした感度解析の実施

本章では、単一崩壊系列の3核種 (Am-241, Np-237, 及びU-233) に着目し、種々のプロセスによる核種移行形態間の変化及びニアフィールド内外の事象による環境条件変化の影響について体系的かつ広範な感度解析を行うための手法開発と同手法を用いた予備的な感度解析についてまとめる。

### 5.1 体系的感度解析の手順

感度解析は、性能評価で必要となる種々の解析の入力情報と出力情報との関係を同定するための手法である。これまでも述べてきた様に、性能評価には必ずしも一意には選定できない選択肢が多く含まれており、多数のケースを設定することが必要である。このような事情を考えれば、感度解析はこれらのケースを統合して性能評価全体としての結論を導出するためには不可欠のものであるということが出来る。本研究で対象とするシャドウモデルを用いた概括的な解析においては、通常の入力データという形式の入力情報に加えて種々の概念モデルやシナリオに対応する仮定が加わるために、体系的な感度解析の重要性はむしろ高まるということが出来る。本節では、まず種々の感度解析手法を概観した後、本研究において使用するべき手法を提案することとする。

#### 5.1.1 感度解析手法

全ての感度解析手法の目的は、所定の数値の範囲内において個々のパラメータあるいは複数のパラメータの組み合わせが結果に及ぼす影響の相対的な重要性を定量的に明らかにすることにある[Doctor, 1989]。つまり、数学的な観点から言えば、感度解析の目指すものは入力パラメータ $X_i, i=1,2,\dots,n$ の関数である結果 $Y=Y[X_i]$ について各パラメータに対応する偏微分係数 $\frac{\partial Y}{\partial X_i}$ を計算することである。しかしながら、原則的には偏微分係数はパラメータ空間内の各点毎に異なるものであり、しかも実際には偏微分係数を算出可能な点数には限りがあることから、各点における偏微分係数によって表現される局所的な感度の情報に基づき解析対象とするパラメータ範囲の全域的な感度を理解するという作業が常に要求されることに注意を要する。

以下に、本研究において使用する可能性がある感度解析手法の概要をそれぞれまとめることとする。

## (1) 決定論的手法

決定論的な手法のうち最も古典的なものは、パラメータ空間内のある点 $(X_1, X_2, \dots, X_n)$ における $Y=Y(X_1, X_2, \dots, X_n)$ と一つのパラメータのみ変動させたもう一つの点 $(X_1+\Delta, X_2, \dots, X_n)$ における $Y=Y(X_1+\Delta, X_2, \dots, X_n)$ を計算し、これら二つの計算結果から $X_1$ についての偏微分係数を以下の様に近似的に求めることである。

$$(1) \quad \frac{\Delta Y}{\Delta X_1} = \frac{Y(X_1+\Delta, X_2, \dots, X_n) - Y(X_1, X_2, \dots, X_n)}{\Delta}$$

しかしながら、性能評価で用いる解析モデルは多くの場合多数のパラメータを有するものであり、この手法で偏微分係数を算出することは計算時間の観点から現実的ではない。

以上の様な背景において比較的最近開発された手法がAdjoint法である。この方法では、本来の方程式系に代わってその随伴問題を解くことにより、パラメータ空間内の任意の点での偏微分係数を用意に計算することが可能となる。また、この様な随伴問題を解く手順を自動化したソフトウェアとしてGRESSあるいはADGENと呼ばれるものが開発されている[Oblow, 1983 等]。

## (2) 統計的手法

統計的な手法は、パラメータ空間から多数の点を統計的にサンプリングし、各点について計算を行った結果に対して多変数の回帰分析を施すというものである。回帰分析の種類は多数存在するが、我々の目的に関して言えば、線形回帰分析とランク回帰分析を代表として考えることができる[Doctor, 1989]。

### ① 線形回帰分析

多変数の問題  $Y=Y(X_1, X_2, \dots, X_n)$  についての線形回帰分析とは、 $Y$  を  $X_i$  の線形和として次式の様に表現し、あるデータセット  $(Y_k)$  について誤差  $\varepsilon_k$  の二乗和を最小化するものである。

$$(2) \quad Y_k = \alpha + \sum_i \beta_i X_{ik} + \varepsilon_k$$

誤差  $\varepsilon_k$  の二乗和を最小化する作業は、(2)式の右辺の線形和と左辺との間の通常の（乗積モーメント）相関係数、

$$(3) \quad r = \frac{\sum_k Y_k \left( \alpha + \sum_i \beta_i X_{ik} \right)}{\sqrt{\text{Var}(Y_k) \text{Var} \left( \alpha + \sum_i \beta_i X_{ik} \right)}}$$

を最大とする様な係数 $\beta_i$ を見いだすことに他ならない。

ここで、各  $X_i$  についての  $\beta_i$  はそれぞれのパラメータの偏微分係数の全域的な「平均」に対応し、相対的な重要度を示すものとなる（但し、厳密に言えば、各パラメータの変動範囲あるいは標準偏差によって規格化することが必要となる）。

## ② ランク回帰分析

線形回帰分析は、線形性が強い問題に対しては簡単でありかつ効果的な手法であるが、 $Y$  が  $X_i$  に対して非線形な依存性を有する場合には、上述した偏微分係数の全域的な「平均」という概念は意味を為さないばかりか誤った結論に至る可能性もある。この様な非線形性の強い問題についても、 $Y$  の  $X_i$  に対する依存性が単調である限りは適用可能な方法がランク回帰分析である。ランク回帰分析は、 $Y$  及び  $X_i$  の数値データの代わりに対応する順位（ランク）に対して線形回帰分析を行うものである。つまり、 $Y_k$  及び  $X_{ik}$  のランクをそれぞれ  $R(Y_k)$ 、 $R(X_{ik})$  とすると、 $R(Y_k)$  を  $R(X_{ik})$  の線形和として次式の様に表現し、残差  $\varepsilon_k^*$  の二乗和を最小化するものである。

$$(4) \quad R(Y_k) = \alpha^* + \sum_i \beta_i^* R(X_{ik}) + \varepsilon_k^*$$

誤差  $\varepsilon_k^*$  の二乗和を最小化する作業は、(4)式の右辺の線形和と左辺との間のランク相関

係数（あるいはSpearmanの相関係数とも呼ばれる）、

$$(5) \quad r_s = \frac{\sum_k R(Y_k) \left( \alpha + \sum_i \beta_i^* R(X_{ik}) \right)}{\sqrt{\text{Var}(R(Y_k)) \text{Var} \left( \alpha + \sum_i \beta_i^* R(X_{ik}) \right)}}$$

を最大とする様な係数 $\beta_i^*$ を見いだすことに他ならない。既に述べた様に、ランク回帰分析の最大の利点は数値データの代わりにランクを用いることにより、 $Y$ の $X_i$ に対する依存性が強い非線形を示しても $R(Y)$ 及び $R(X_i)$ はこの特性を保存せず、従って依存性が単調である限りは適用可能であるということである。

### (3) Hybrid法

Hybrid法は、決定論的な感度解析と統計的な感度解析を組み合わせることにより、より効率的に感度（偏微分係数）のパラメータ空間内での全域的な分布を調査しようというものである。具体的には、(2)と同様にパラメータ空間内で所定の点数の統計的なサンプリングを実施し、各点について計算を行う。ここで、通常の統計的な手法との最大の相異は、Hybrid法では各点での $Y$ に加えて $Y$ の各パラメータに関する偏微分係数も同時に計算するということである。この方法では、 $Y$ に加えて $Y$ の各パラメータに関する偏微分係数も同時に再現することが可能な $X_i$ の線形和を見いだすことが必要となる。つまり、

$$(6) \quad \begin{pmatrix} Y_k \\ \left( \frac{\partial Y}{\partial X_1} \right)_k \\ \vdots \\ \left( \frac{\partial Y}{\partial X_n} \right)_k \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \alpha + \sum_i \beta_i X_{ik} \\ \beta_{1k} \\ \vdots \\ \beta_{nk} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \varepsilon_k \\ \varepsilon_{1k} \\ \vdots \\ \varepsilon_{nk} \end{pmatrix}$$

という形の表現で、残差ベクトル $\varepsilon_k$ を最小化する様なものを見いだすことが必要となる。

ここで、残差ベクトル $\varepsilon_k$ の大きさは、通常二乗和の代わりに重み付けされたソボレフの二乗和

$$(7) \quad \sqrt{\sum_k \epsilon^2 + \sum_k \sum_i w_i \epsilon_i^2}$$

によって測る必要があることに注意を要する。ここで、 $W$ は重みであり通常は $W_i = X_i$ と設定される。

### 5.1.2 本解析に用いる感度解析手法の選定

前節に述べた種々の感度解析手法の優劣は普遍的なものではなく、問題毎の特性により異なるものと考えられる。そこで、本解析では現バージョンのSPADEが通常モードでの計算に加えて各パラメータについての偏微分係数を計算可能であることから、以下の3種類の感度解析手法を比較しつつ利用するものとする。

- 1) 線形回帰分析
- 2) ランク回帰分析
- 3) Hybrid法

これらの手法を比較する上での尺度は、単位計算時間あたりに得られる感度情報である。例えば、3)のHybrid法は少なくとも理論的には最小の計算ケース数で感度を明らかにすることが可能と考えられるが、同時に、必要とされる計算時間は最も長い。そこで、これら二種類の情報をいずれも考慮して手法の比較を行うこととする。

## 5.2 一定環境条件下での核種移行プロセスに関する感度解析の実施

本節では、環境条件一定という仮定の下に、種々の核種移行プロセスを包含し得るシャドウモデルを設計しこれを用いて行った感度解析手法の比較及び解析の結果をまとめることとする。

### 5.2.1 シャドウモデルの設定

環境条件が一定の場合、さらに各移行形態間の転移が全て「速い反応」であるという仮定を置くと、全ての核種移行プロセスは広義拡散係数 $\alpha$ を全核種濃度 $C$ の関数 $\alpha(C)$ として表現することによって包含される。また、 $\alpha$ の代わりに $\alpha C$ を用いることとすると、こ

れがCの関数として単調増加関数でなくてはならないことは全ての移行形態に対応する拡散係数が非負であることから明らかである。そこで、以下の検討では $\alpha C$ についてのシャドウモデルを設定して解析を実施することとする。

シャドウモデルの設定にあたっては、既知の（物理的な意味の明確な）モデルの特徴を整理した上で、これらを全て近似的に表現でき、かつ、既知のモデル以外の可能性をも表現できる様な関数系を選定することが必要である。そこで、まず、図5.2.1-1に示すように、表2.4-1に挙げた全ての既知のモデルに対応する $\alpha C$ を計算し両対数プロットを行った。同図から明らかな様に、各モデルに共通した特徴は、Cの関数としての $\alpha C$ のグラフがたかだか有限個のそれぞれ異なる傾きを持った線分とこれらをつなぐ遷移領域（スイッチ）とから構成されているという点である。そこで、シャドウモデルを次の様に設定する（数式としては、 $a_i \log C$ という部分がi番目の線分に当たり、総和の項は基本的にはi-1番目の線分をキャンセルし、新たにi番目の線分を加えるという操作を順次行う構造をとっている。 $\xi$ を含む項は、このi-1番目のものとi番目のものの入れ換えを滑らかにを行うためのものである）。

$$(8) \quad \log(\alpha C) = \log f + \{1 - \xi(b_i, \log C - \log c_i)\} a_i \log C + \sum_{i=2}^n \xi(b_{i-1}, \log C - \log c_{i-1}) \{1 - \xi(b_i, \log C - \log c_i)\} \{a_i \log C + (1 - a_i) \log c_{i-1}\}$$

ただし、 $\xi(x, y) = \frac{1 - \tanh(x/y)}{2}$  であり、各パラメータの幾何学的な意味は次の通りである。

- $a_i$ ; 左からi番目の線分の傾き
- $b_i$ ; 左からi番目の線分とi+1番目の線分との間のスイッチの硬さ
- $c_i$ ; 左からi番目の線分とi+1番目の線分との間のスイッチの位置
- $f$ ; 縦軸についての切片

物理的な意味としては、スイッチは例えば溶解度や、非線形吸着における飽和吸着量に対応する液相濃度あるいはコロイド生成のしきい濃度等の核種の移行形態間の配分挙動が変化する全濃度に該当するものということができる。また、これと対応して各パラメー

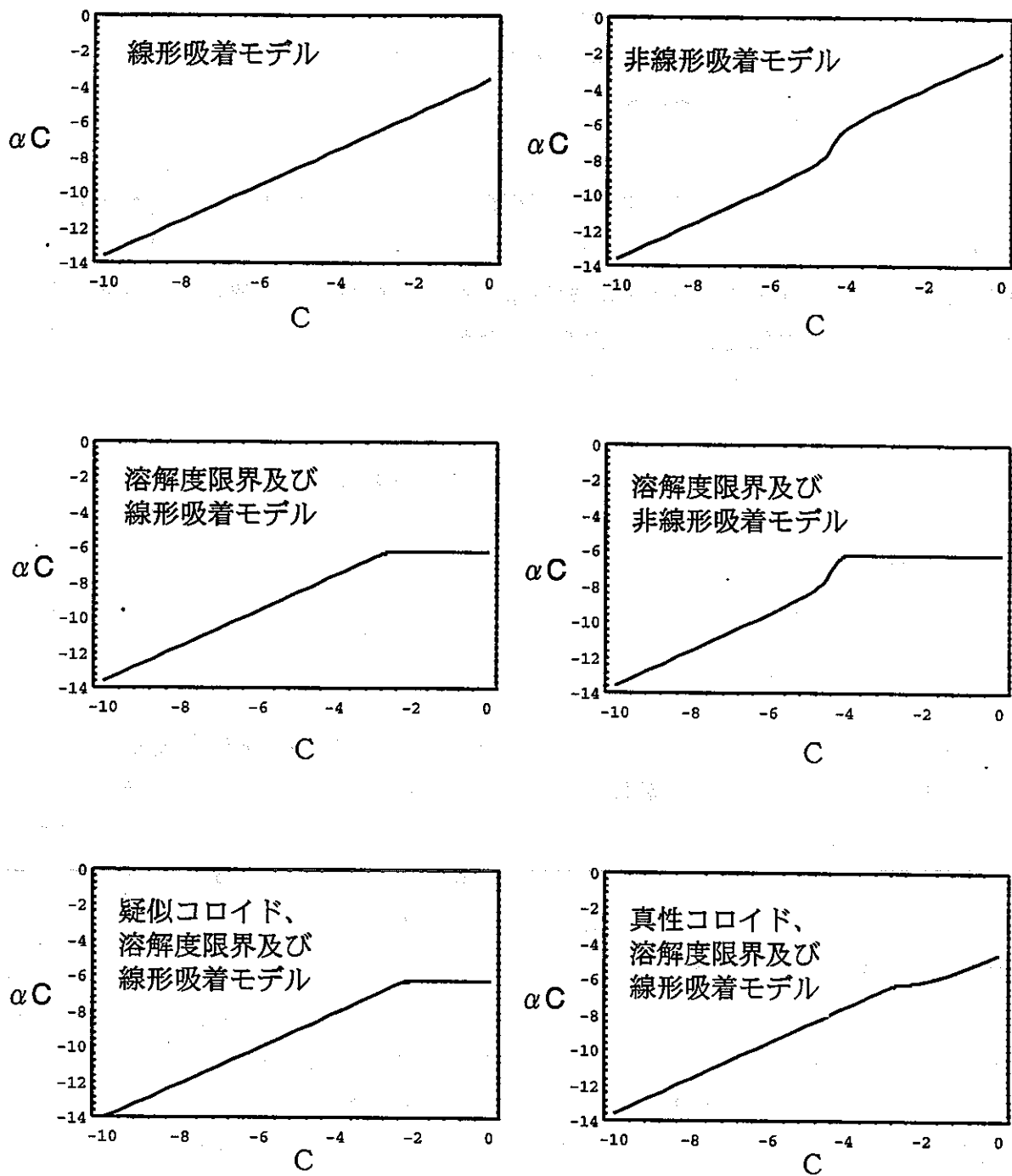


図 5.2.1-1 既知のモデルに対応する  $\alpha C$  の例



タの現象論的な意味を次の様にまとめることができる。

- ai; i番目の（全）濃度区間における $\alpha C$ の濃度への依存性（指数）
- bi; i番目とi+1番目の（全）濃度区間の間の遷移領域の大きさ
- ci; 移行形態間の配分挙動が変化するしきい（全）濃度
- f; 微小濃度領域での $\alpha$

このシャドウモデルは、任意の位置に任意個のスイッチを配置して、それぞれ固有の硬さ（遷移領域の大きさ）で一つの線分からこれと隣接した線分へと切り替えを行うことが可能である。また、単純な「区分的に線形な」曲線（折れ線）と異なり、各点で微分可能なものであることが特徴である。この微分可能性により、スイッチに該当する部分でのSPADEのタイムステップ管理はより容易なものとなる。

(8)式のシャドウモデルを用いて図5.2.1-1の各モデルを近似した結果を図5.2.1-2にまとめる。同図から明らかなどおり、このシャドウモデルは既知のモデルを十分な精度で近似することが可能である。

## 5.2.2 核種移行解析の結果

前節に述べた $\alpha C$ についてのシャドウモデルを用いて、核種移行解析を実施した。シャドウモデル中の各パラメータ値の範囲と分布形は表5.2.2-1にまとめる通りである。なお、今回の解析では、この形式のシャドウモデルを用いる初めての機会であるため、感度解析結果の解釈が不必要に複雑になることを避けて、単一のスイッチを持つシャドウモデルに限定することとした。また、ゆるみ域内での移流係数は、簡単のため常に1とした（つまり物理的には全ての核種が移流により移動可能であることを意味する）。以上二つの仮定については他の選択肢も存在していることから、将来の解析に於いてはこれらも種々に変動させることが望ましい。そこで、シャドウモデルに含まれる各パラメータについて表5.2.2-1に示す範囲と分布形とを考慮し、これに基づき統計的サンプリングを行い多数の $\alpha C$ とCの関係の設定を行った（図5.2.2-1に例を示す）。また、表5.2.2-1以外のパラメータ値は、3.に述べた解析と全く同じである。

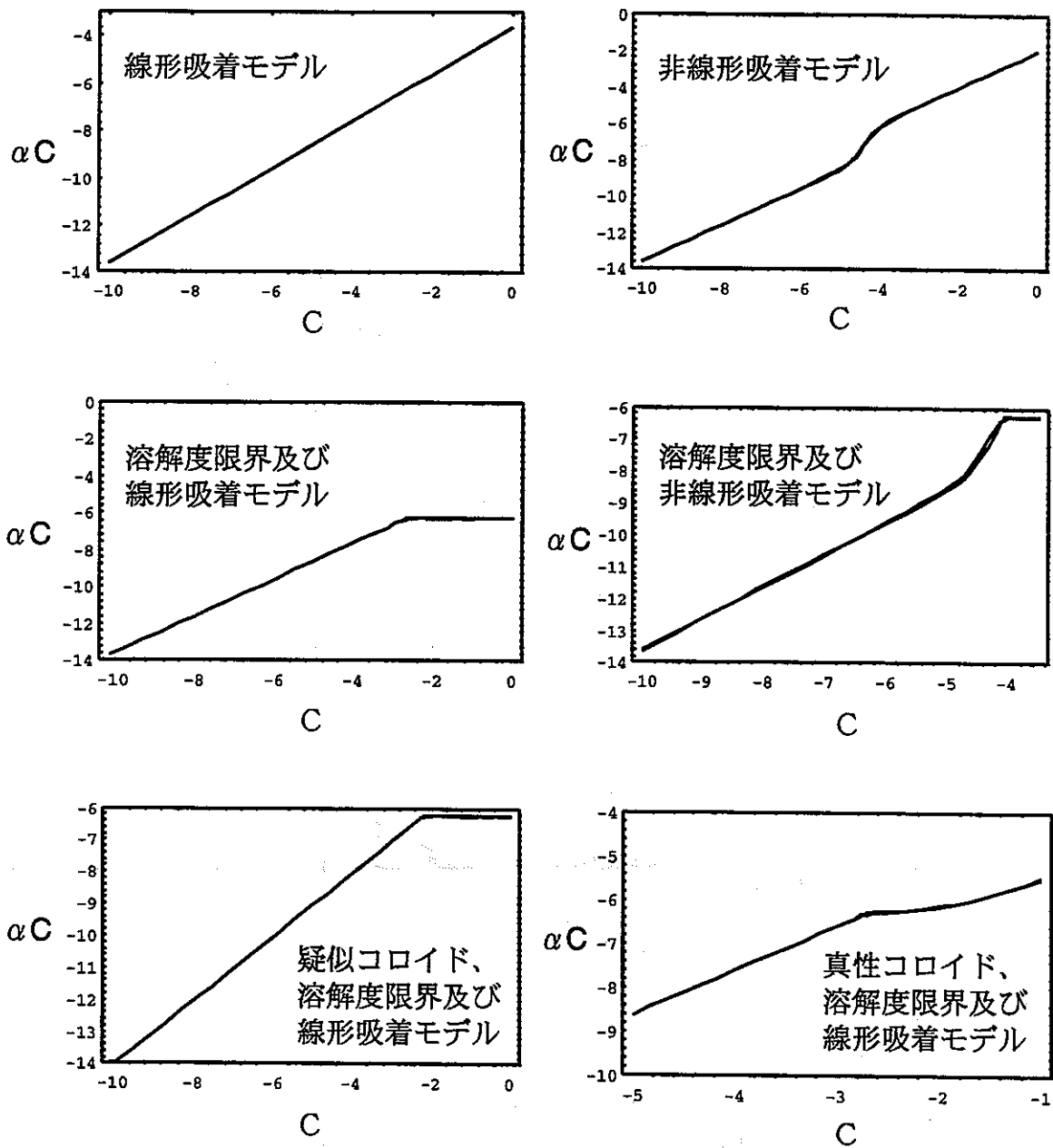


図 5.2.1-2 既知のモデル及び対応するシャドウモデル

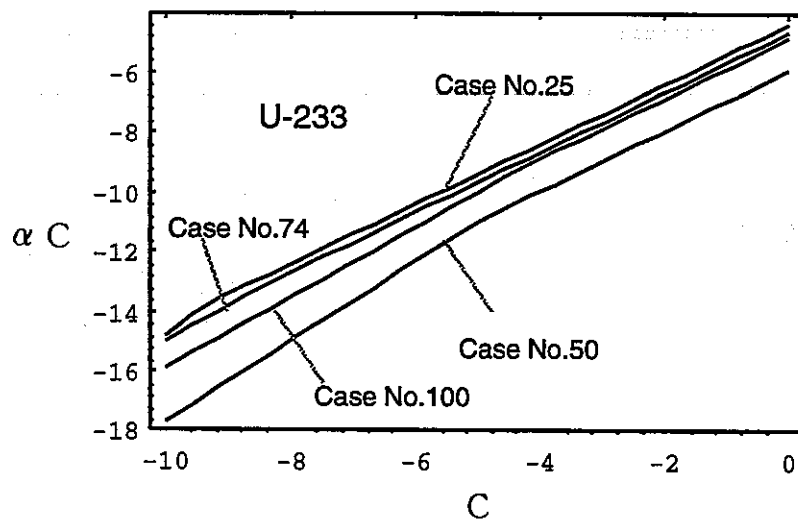
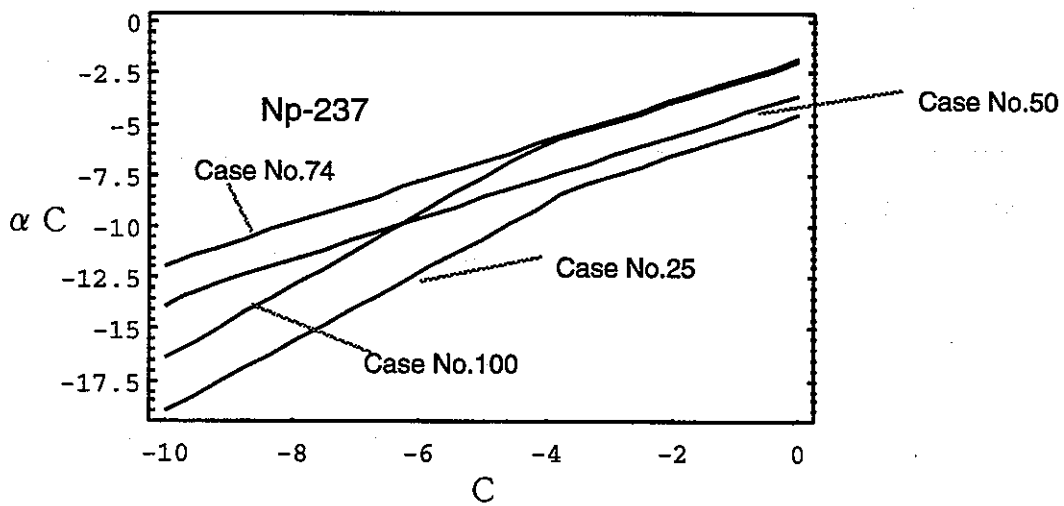
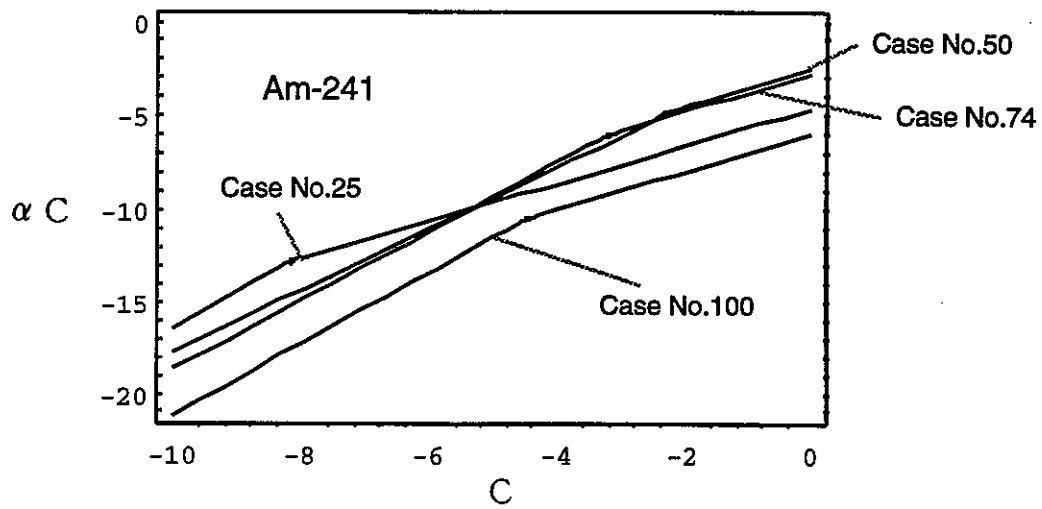
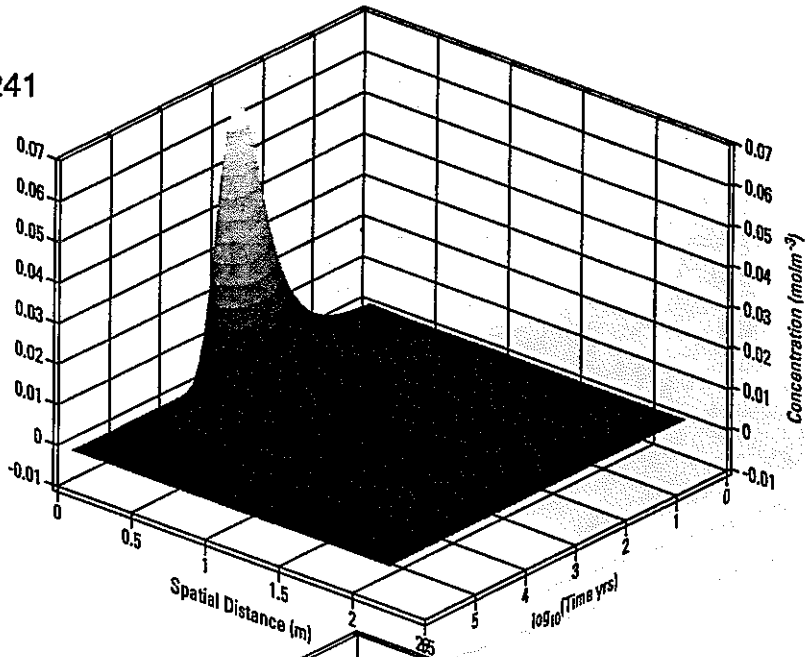
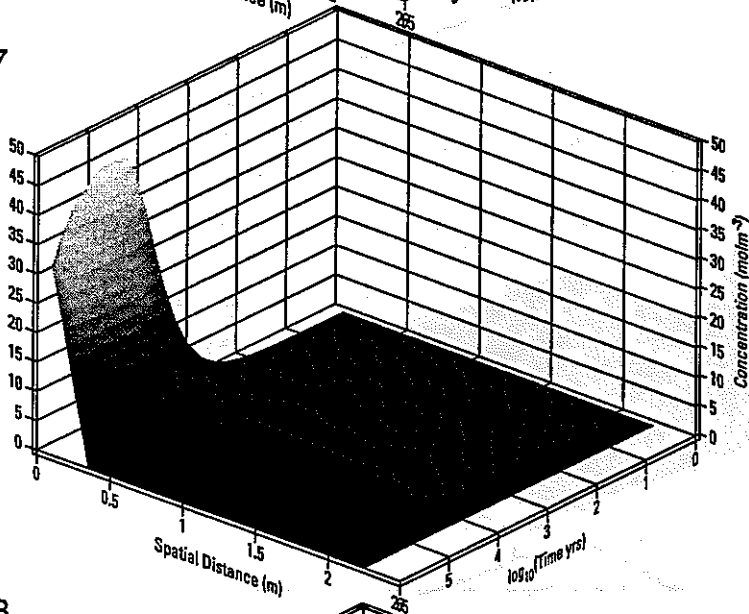


図5.2.2-1 統計的に作成された広義拡散係数についてのシャドウモデルの例

Am-241



Np-237



U-233

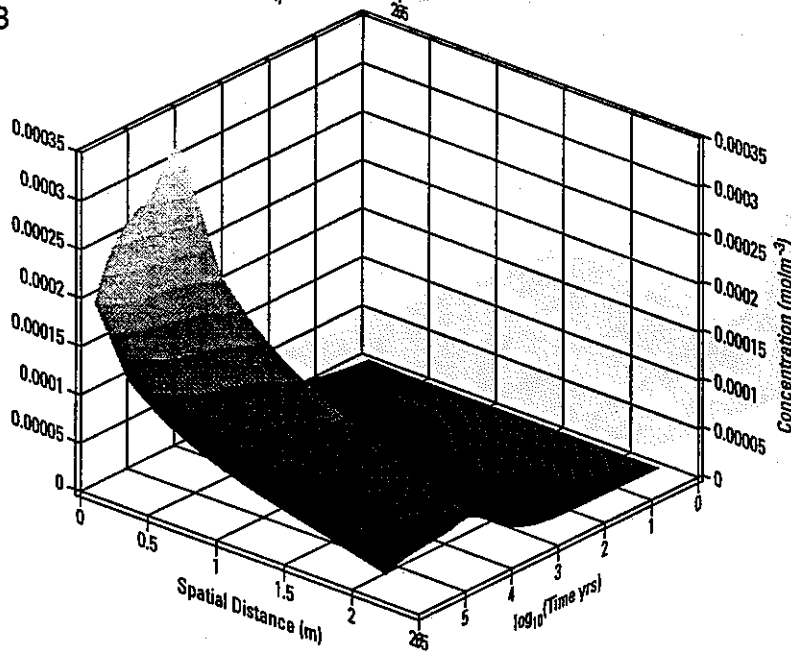
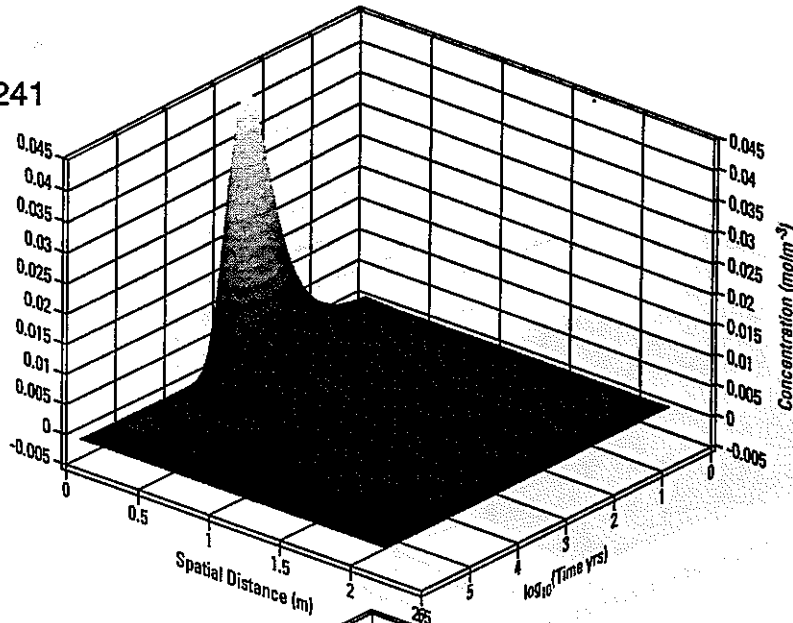
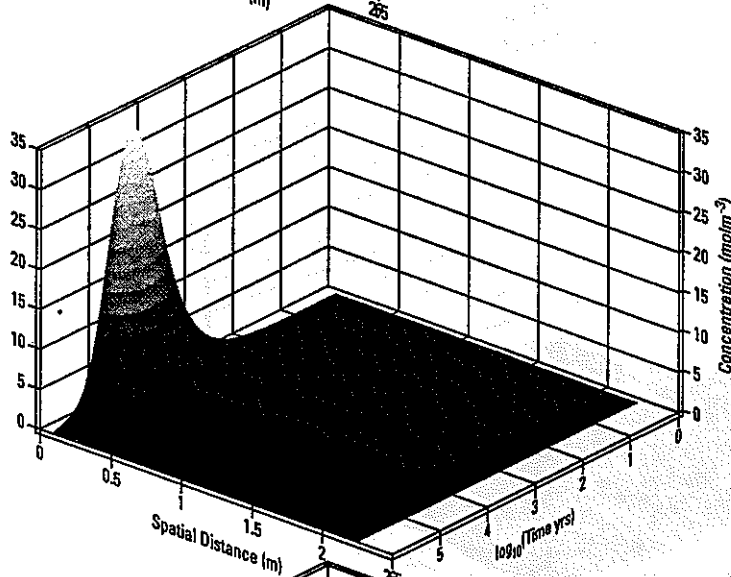


図5.2.2-2 人工バリア内核種濃度分布 (Case No.100)

Am-241



Np-237



U-233

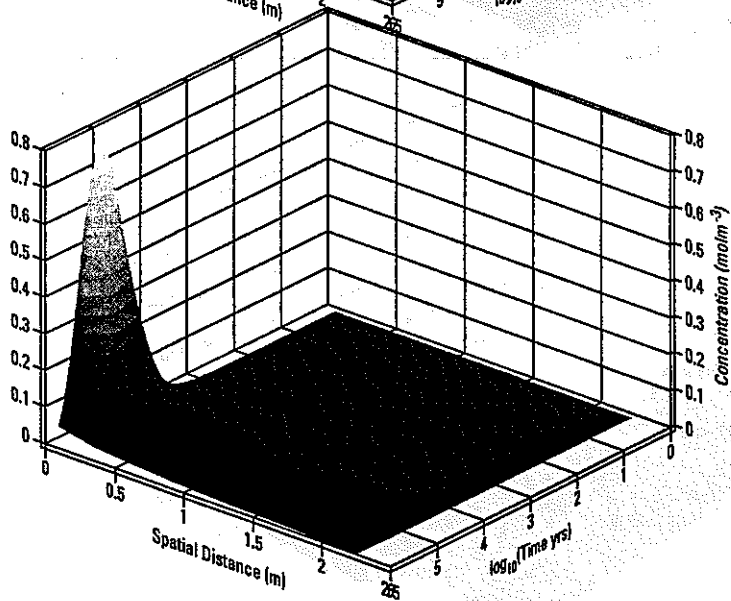
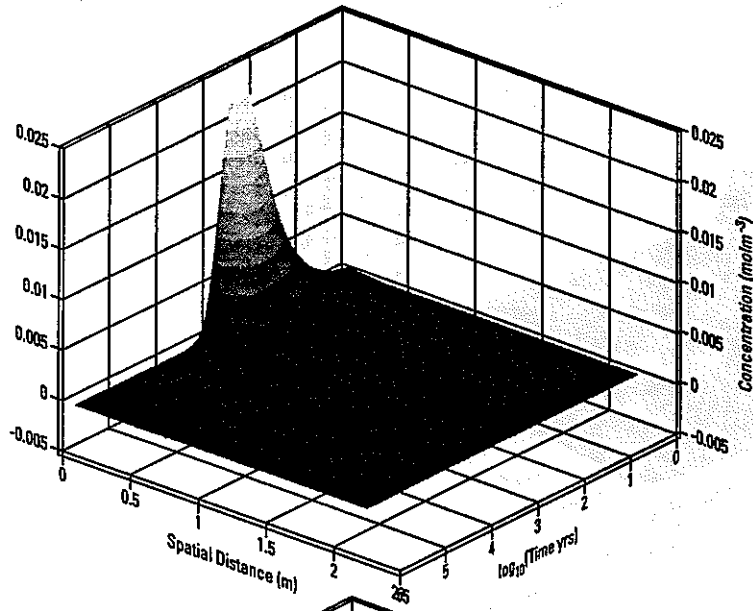


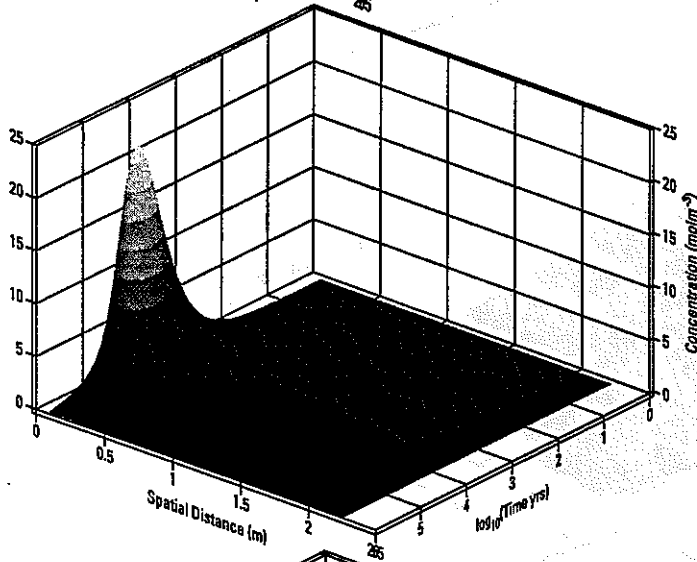
図5.2.2-3 人工バリア内核種濃度分布 (Case No.25)

Am-241

Case No.50



Np-237



U-233

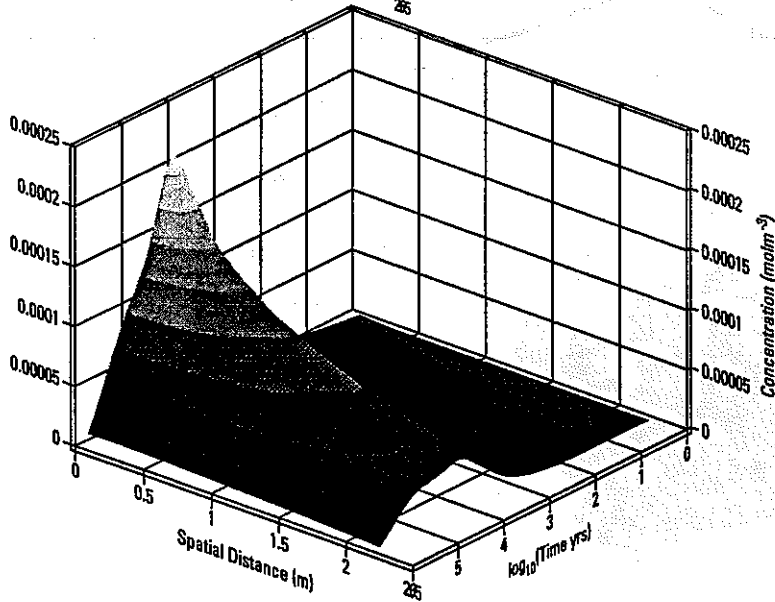
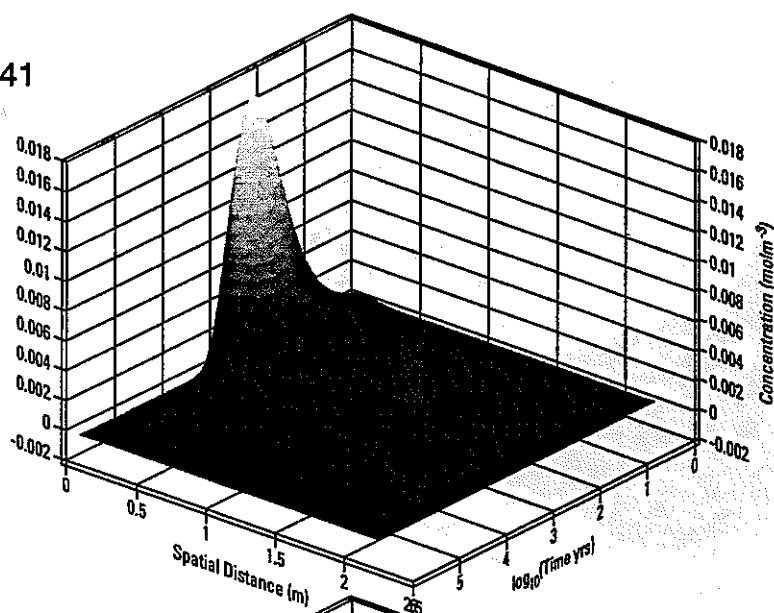
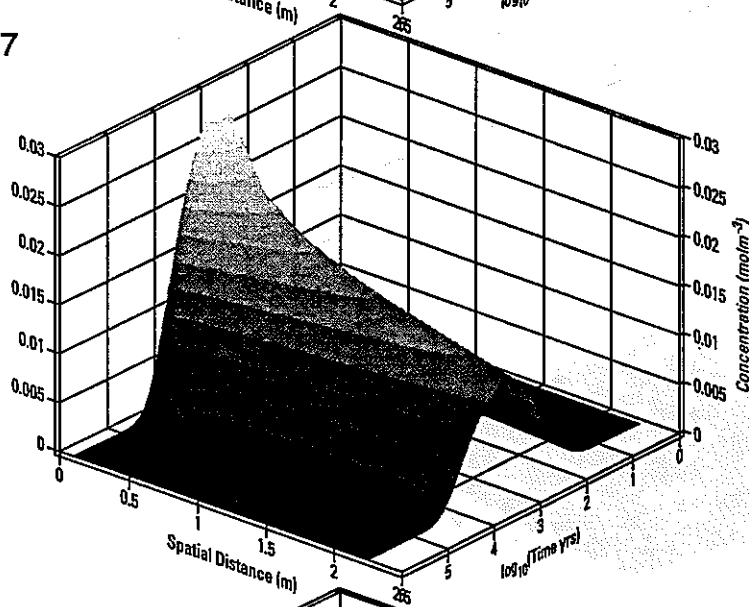


図5.2.2-4 人工バリア内核種濃度分布 (Case No.50)

Am-241



Np-237



U-233

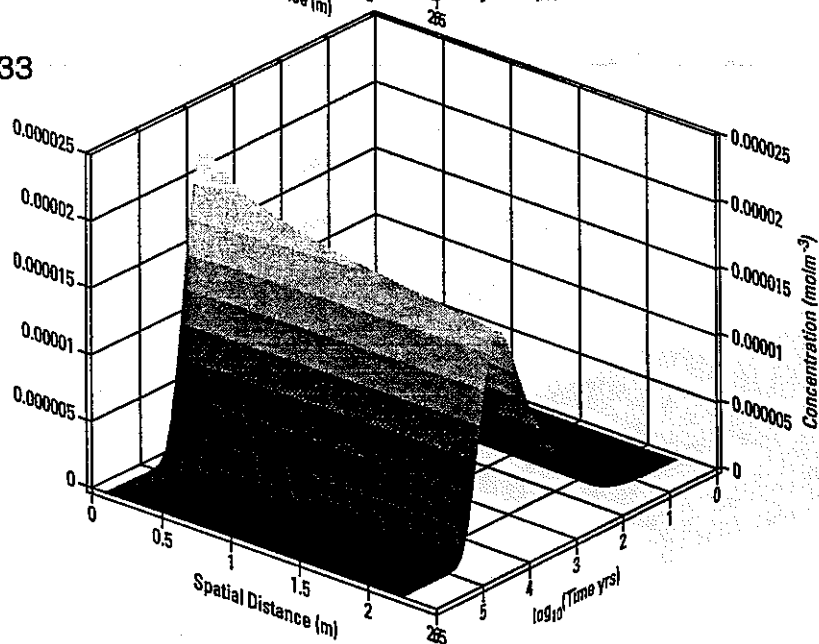


図5.2.2-5 人工バリア内核種濃度分布 (Case No.74)

表5.2.2-1 一定環境条件下での種々の核種移行プロセスについての解析条件

パラメータ	範囲	分布形
a1	1	固定
b1	1 - 100	Uniform
c1	10 <sup>-10</sup> - 10	Log Uniform
a2	0 - 1	Uniform
f	2.85 × 10 <sup>-7</sup> - 2.85 × 10 <sup>-2</sup>	Log Uniform

なお、ここでの解析対象とする崩壊系列に含まれる3元素について、各パラメータのサンプリングは統計的に独立に実施した。これは、一定環境条件下での核種移行挙動は元素毎に異なる可能性があると考えられるためである。実際の核種移行解析は、上述した統計的なサンプリングによって作成した個々のケース毎に実施した。図5.2.2-2から5は、前表の条件について実施した解析結果（濃度分布の時間変化）の例である。

### 5.2.3 感度解析

#### (1) Hybrid法と統計的手法の比較

既に述べた様に、ここでの感度解析は手法の選定も同時に実施するものである。この観点から、前出の三種類の手法のうち、SPADEの稼動モード自体を変更する必要があるHybrid法の効率をまず評価することとした。

単一核種(Np-237) のみについて、32ケースの解析条件を統計的にサンプリングし、SPADEを用いて最大核種放出フラックス及びピーク到達時刻での核種放出フラックスの各パラメータに対する偏微分係数を算出した。これら32ケースに対する線形回帰分析及



びHybrid法による回帰分析の結果を図5.2.3-1にまとめる。図から明らかな通り、Hybrid法では(6)及び(7)式により各偏微分係数の数値も考慮した回帰を行っているにも拘わらず、結果は単純な線形回帰と殆ど変わらない。他方、計算効率の点では、通常モードでのSPADEの計算が1ケース1分以内で終了しているのに対して、偏微分係数を同時に算出するモードでは平均10分以上を要している(いずれもSciliconGraphics Indigo 上で)。以上の結果から、我々の解析についてはHybrid法は必ずしも効率の高い感度解析手法ではないといえることができる。しかしながら、このような傾向は解くべき方程式形や差分条件に依存するものであり、他のケースに関しては手法の優劣は逆転し得るものであることに注意を要する。

## (2) 統計的手法による感度解析

次に、Am-241、Np-237、及びU-233の崩壊系列について新たに172ケースの統計的なサンプリングを行いSPADEによる核種移行解析を実施した。107年までの各核種の最大放出率の分布を図5.2.3-2にまとめる。以下、これらに対して行った線形回帰分析及びランク回帰分析の結果を整理する。

### ① 線形回帰分析

ここでは、ステップワイズな線形回帰分析と呼ばれる手法により、パラメータの重要度分類を明らかにしつつ最適な線形回帰モデルを見いだすこととする。ステップワイズな回帰分析は、最も優先順位の高い単一のパラメータによる回帰分析から始めて徐々に優先順位の相対的に低いパラメータを付加しつつ回帰モデルを更新していき、回帰結果に顕著な改善が見られなくなるまでこの手順を反復するというものである。具体的には、 $i$ 回目の回帰ステップにおいて最も残差の少ない $i$ 個のパラメータの組を選定し、 $i+1$ 回目のステップでは前回選んだ $i$ 個のパラメータの組に残されたパラメータのうちで残差を最小化するものを一つだけ付加するという作業を繰り返すものである。Np-237を例として最初の4つの回帰ステップにおける残差の減少をまとめたものが図5.2.3-3である(各ステップにおいて残差が最小となるパラメータの組のみが採用されていることに注意)。図から明らかな通り、4回目の回帰後の残差は3回目のものとほぼ同等であり、4つの主要なパラメータにより線形回帰モデルが十分に表現されることがわかる。図5.2.3-4は、同じくNp-237を例として、線形回帰の改善をスクATTERプロットとしてまとめたものである。徐々に回帰モデルの残差が減少していることはこの図からも明らかであるが、これに

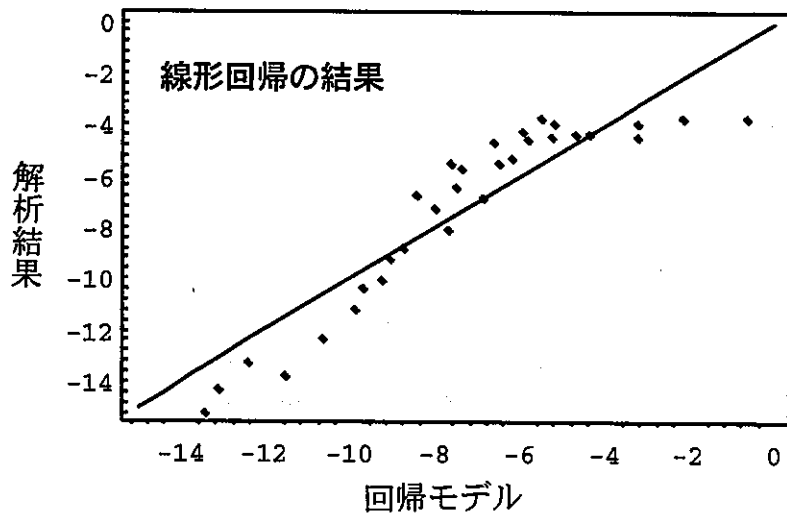
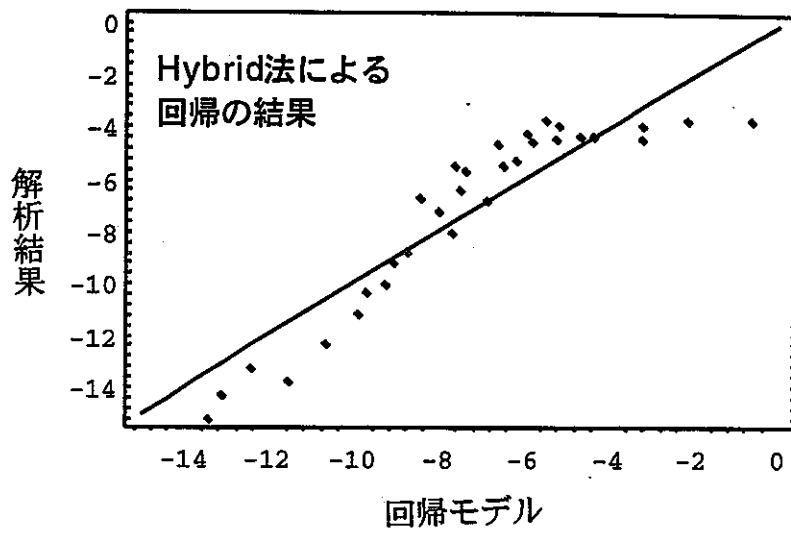


図5.2.3-1 Hybrid法による回帰及び線形回帰の結果の比較

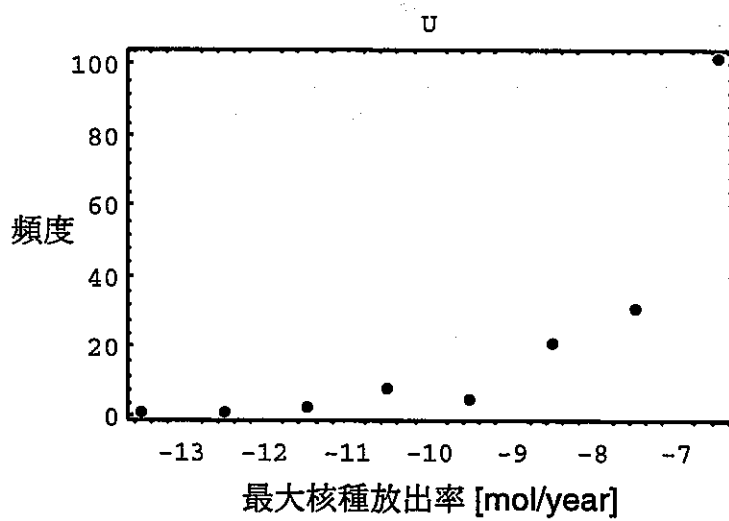
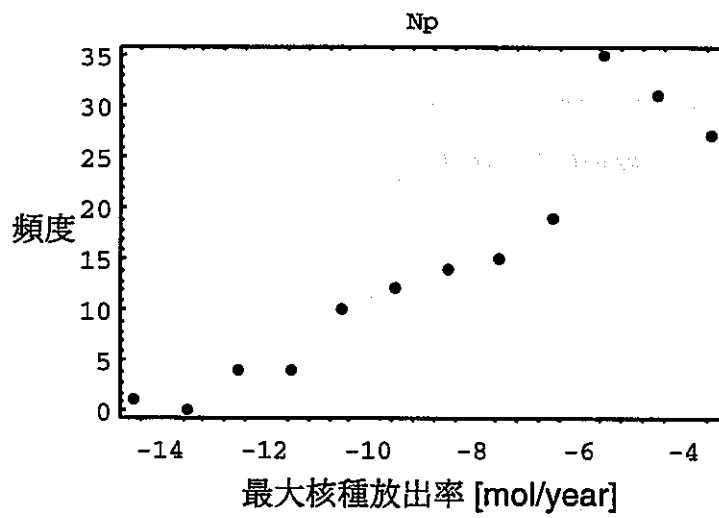
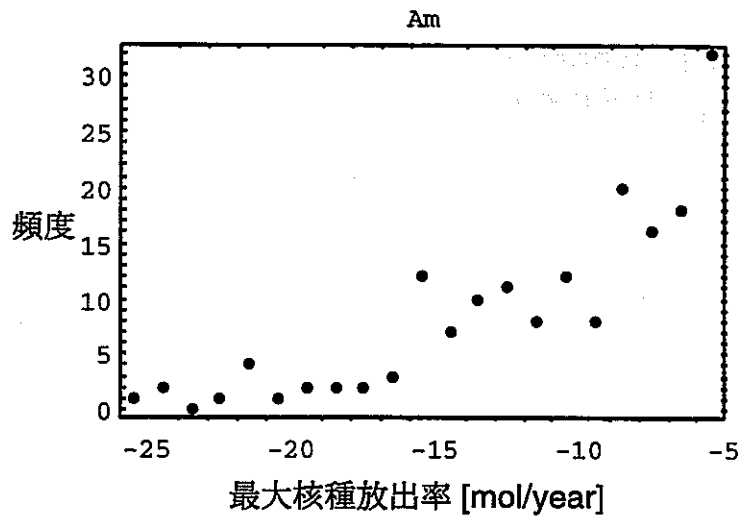


図5.2.3-2 最大核種放出率のヒストグラム

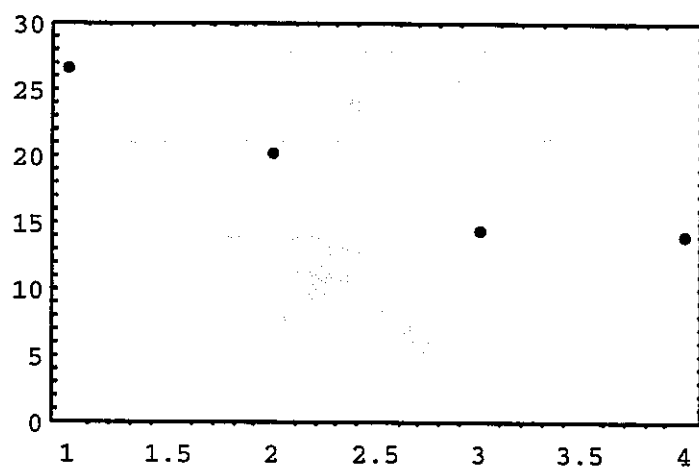


図5.2.3-3 Np-237の最大放出率に対するステップワイズな線形回帰分析における残差の減少

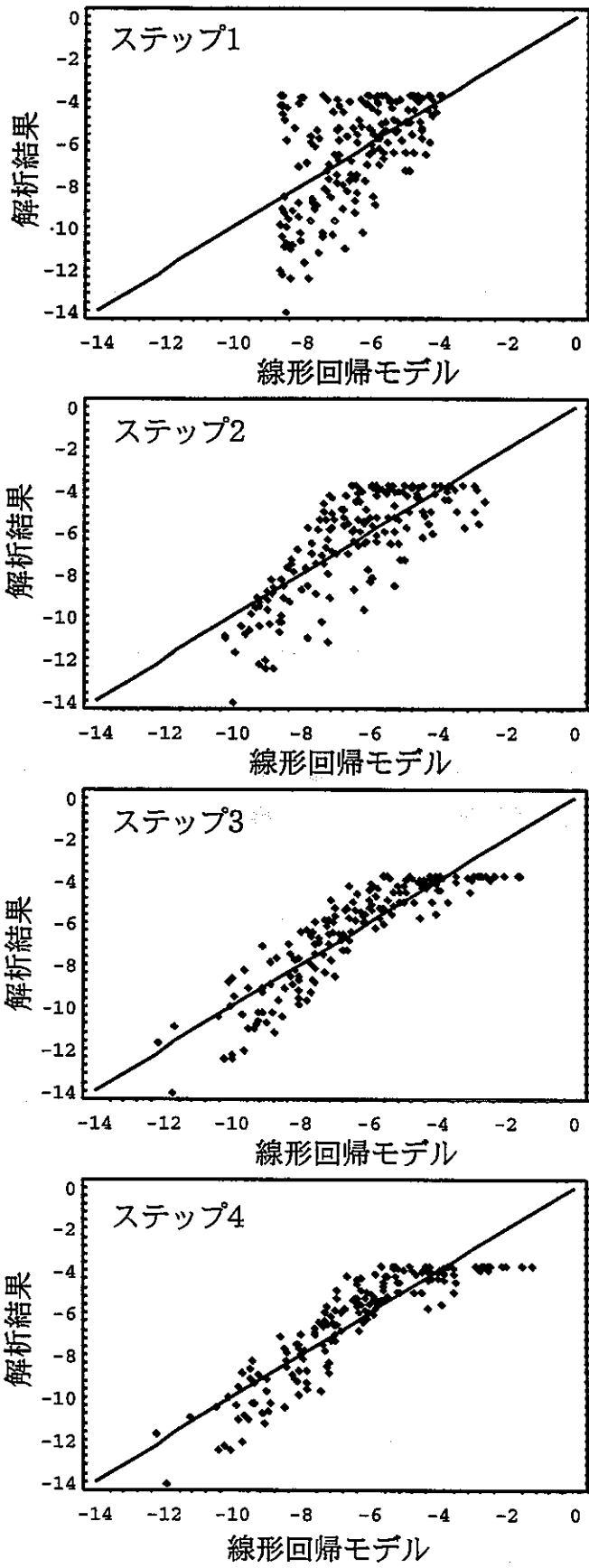


図5.2.3-4 Np-237の最大放出率に対するステップワイズな線形回帰（スキャッタープロット）

加えて、解析結果の非線形性が無視し得ないものであることに起因する線形回帰モデルの限界も顕著である。特に、最大核種放出率が大きい側では、パラメータ値によらず解析結果の放出率は頭うちとなっている。これは、ガラス固化体の溶解時間に対応する放出率の上限に対応するものである。今回の感度解析解析対象とはしなかったがこの領域でのパラメータの組み合わせにおいてはガラス浸出速度が最重要パラメータとなり得ること（つまり、ガラス浸出により供給される以上の核種放出は生じないということ）を示している。表5.2.3-1に、最終的に得られた各核種の最大放出率に対するパラメータの重要度をまとめる。

表5.2.3-1 線形回帰により得られた各核種の最大放出率に対するパラメータの重要度順位\*

核種	順位 1	順位2	順位3	順位4
Am-241	f(Am)	$c_1$ (Am)	$a_2$ (Am)	$b_1$ (Am)
Np-237	$c_1$ (Np)	$a_2$ (Np)	f(Np)	f(Am)
U-233	$c_1$ (U)	$a_2$ (U)	f(U)	$c_1$ (Np)

\*注：ステップ回帰分析における重要度の順位は、パラメータの感度の高い低いに係わらず相関係数の比較のみによって決まる。

Am-241については、fつまり微小濃度領域での平均拡散係数が最も重要な感度を有していることがわかる。fは、通常の線形吸着モデルの場合と同様、機能的には拡散フロントの伝播速度とその遅延を支配するパラメータである。このため、比較的短半減期であるAm-241については、移行が遅延される間の崩壊が最も重要であるという傾向は多様なシャドウモデルを用いた計算結果にも該当するものであることがわかる。また、第二及び第三位にはそれぞれしきい全濃度とそれよりも高い濃度での移行形態間の配分についてのパラメータである $c_1$ 及び $a_2$ が位置づけられている。

より長半減期であるNp-237については、 $c_1$ つまりしきい（全）濃度としきい濃度以上の領域での移行形態間の配分を支配する $a_2$ が最も重要となる。 $c_1$ の感度は、溶解度の概念

を一般化することによって理解することが可能である。つまり、機能的には、前出のガラス浸出率律速のプラトーに至る手前で、沈澱形成あるいはコロイド生成等によりCに対する $\alpha C$ の増大を鈍化させる（最も極端には、溶解・沈澱モデルのように完全に増大を停止させる）という役割を有している。また、 $a_2$ はこの鈍化の程度を規定するものとして重要性を有している。

U-233の感度は、上記二つの核種の感度の中間的な振る舞いを示すものであることがわかる。つまり、最も重要なパラメータは $c_1$ でありこれはNp-237と同様であるが、その次には移行遅延に関連する $f$ が位置づけられている。この結果は、U-233の半減期を考慮すれば妥当なものと思われる。

第三、及び第四に重要なパラメータについては核種間に相異があり、また、既に述べた様に線形モデルの適合性が必ずしも高いものではないことから、これらについて詳細な傾向を議論することは不適當と思われる。しかしながら、Np-237及びU-233においてそれぞれ親核種のパラメータが重要性を持つことは特筆に値する。これは、平成3年度性能評価研究成果報告書でも触れられているように、親核種の崩壊による娘核種の供給が娘核種の最大放出率に有意に寄与する可能性を示唆しているものと考えられる。また、さらに言えば、Np-237の場合もU-233の場合も娘核種に最も大きな影響を及ぼしているのは親核種自体の移行挙動に対して支配的なパラメータであり、この点も回帰分析結果の整合性を示すものと考えることができる。

## ② ランク回帰分析

ランク回帰分析についても、ステップワイズな手順で検討を行った。図5.2.3-5は、Np-237を例として、4ステップ目の線形回帰の結果をスキッタープロットとしてまとめたものである。ここでは、線形回帰モデルの場合と異なり、解析結果の非線形性が無視し得ないものであることに起因する回帰モデルの限界は顕著ではない。表5.2.3-2に、最終的に得られた各核種の最大放出率に対するパラメータの重要度をまとめる。

Np-237とU-233について第1位と第2位とが逆転していることを除けば線形回帰分析の結果と同様の傾向を示している。また、1ステップの回帰終了時のNp-237とU-233の第1位と第2位との残差の相異は微小なものであることから、以上のパラメータの重要度分類はこれら二つの感度解析手法の選択に強く依存するものではなく、ある程度の蓋然性

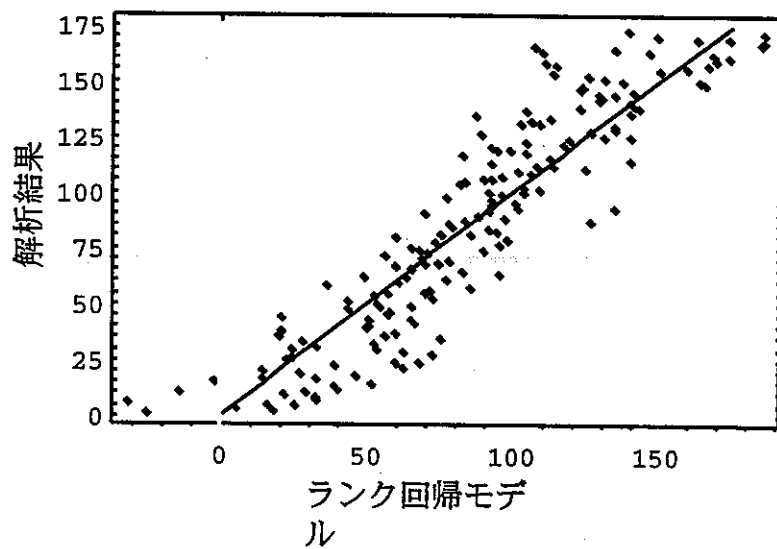


図5.2.3-5 Np-237最大放出率についてのランク回帰分析の結果  
(4ステップ目)



をもつものであることを言うことができる。

表5.2.3-2 ランク回帰により得られた各核種の最大放出率に対するパラメータの  
重要度順位

核種	順位1	順位2	順位3	順位4
Am-241	f(Am)	c <sub>1</sub> (Am)	a <sub>2</sub> (Am)	b <sub>1</sub> (Am)
Np-237	a <sub>2</sub> (Np)	c <sub>1</sub> (Np)	f(Np)	f(Am)
U-233	f(U)	c <sub>1</sub> (Np)	a <sub>2</sub> (U)	c <sub>1</sub> (Np)

### ③ まとめ

既に述べた様に、ランク回帰分析に於いては線形回帰分析ほど解析結果の有する非線形性の影響が顕著とはならない。この様な回帰モデルの適合性を総合的かつ定量的に調べるためには、以下の様に定義される多重相関係数 R<sup>2</sup>、

$$(9) \quad R^2 = 1 - \frac{\sum_k (Y_k - \hat{Y}_k)^2}{\sum_k (Y_k - \bar{Y}_k)^2}$$

を比較すれば良い。ただし、 $\hat{Y}_k$ ,  $\bar{Y}_k$ はそれぞれYの回帰モデルによる推定値及び平均をそれぞれ表す。各核種の最大放出率に対する最良の線形回帰モデル、ランク回帰モデル及びこれらの多重相関係数を表5.2.3-3にまとめる。同表からわかる様に、両者の相関係数の差異は必ずしも顕著なものではないが、ランク回帰モデルにおける多重相関係数の方が線形回帰モデルのそれを常に上回っており、上述した非線形性への適合性を裏付けるものとなっている。また、モデルに含まれる各係数は、ランク回帰分析の場合には自然に規格化されており、対応する各パラメータの感度として直接比較可能であることも利点の一つである。勿論、線形回帰モデルについても規格化を行うことは可能であるが、規格化の方法は必ずしも一義的ではないという問題もある。

表5.2.3-3 各核種の最大放出率に対する最良の線形回帰モデル及びランク回帰モデルの多重相関係数\*

核種	線形回帰モデル及びそのR <sup>2</sup>	ランク回帰モデル及びそのR <sup>2</sup>
Am-241	$1.84+2.86f(\text{Am})+0.429c_1(\text{Am})$ $+2.37a_2(\text{Am})+0.00828b_1(\text{Am})$ 0.768	$-32.8+0.891f(\text{Am})+0.303c_1(\text{Am})$ $+0.146a_2(\text{Am})+0.0426b_1(\text{Am})$ 0.889
Np-237	$-2.62+0.490c_1(\text{Np})+4.88a_2(\text{Np})$ $+0.716f(\text{Np})+0.194f(\text{Am})$ 0.806	$-58.5+0.575a_2(\text{Np})+0.537c_1(\text{Np})$ $+0.486f(\text{Np})+0.0816f(\text{Am})$ 0.838
U-233	$-5.27+0.283c_1(\text{U})+0.464f(\text{U})$ $+1.87a_2(\text{U})-0.046c_1(\text{Np})$ 0.647	$-37.3+0.584f(\text{U})+0.589c_1(\text{U})$ $+0.377a_2(\text{U})-0.130c_1(\text{Np})$ 0.680

\*注：ステップ回帰分析における重要度の順位は、各単一のパラメータの感度の高い低いに係わらず相関係数の比較のみによって決められるものである。

### 5.3 沈澱・溶解及び吸着の瞬時平衡を含む一定の核種移行プロセスに対する環境条件変化の影響の感度解析の実施

本節では、前節とは逆に核種移行プロセスを最も標準的な線形吸着と溶解度限界を組み合わせたモデルに固定し、代わりに環境条件に強く依存すると考えられる溶解度を時間・空間的に変化させるという問題について統計的な感度解析を実施した結果をまとめる。

#### 5.3.1 シャドウモデルの設定

上記仮定の下に実施する解析において環境条件の変化を記述するためには、溶解度を時間及び空間の関数として与えることができれば十分である。しかしながら、明らかにこの

様な関数の全体は無次元の関数空間を為すものであり、何らかの更なる仮定なしには空間全体について包括的な解析を実施することは不可能である。そこで、ここでは、以下の現象論的な仮定を設けることとする。

- i) 溶解度の数値としては、3.に述べた還元環境での標準的な値と無限大という二つの離散的な数値のみを採ることとする。つまり、溶解度限界が実効的な放出制限機構となるような通常の地球化学的な条件と、酸化性雰囲気のような溶解度限界が事実上成り立たないような極端な環境条件の二つを考え、これらが時間・空間的に入れ替わるものとする。
- ii) i)の条件に対応する様な化学的なフロントは、様々な種類の反応・拡散方程式の解に対応するものであり、これらの解は進行波解という空間的なパターンの伝播という形式で与えられることが知られている[Grindrod, 1990], [Ortoleva, 1994]。そこで、上記の通常の地球化学的な条件が成立している領域と酸化性雰囲気等の極端な条件の領域との間には明瞭な境界が存在し、これが時間的に進退するものと仮定する。
- iii) 簡単のため、各核種とも与えられた環境条件の変化に同様に応答するものとする。

以上の仮定の下に、環境条件の種々の変遷を記述するものとして、評価時間と人工バリア厚さによってそれぞれ規格化された時空間平面上に有限個の楕円を統計的に配置するというシャドウモデルが提案されている[Takase and Grindrod, 1996]。そこで、本研究でも、このシャドウモデルを踏襲して解析を行うものとする。また、前節の場合と同じく、今回の解析が予備的なものであることから楕円の個数を2に限定し、これらの楕円はそれぞれ中心の位置座標が人工バリアの内側及び外側境界にそれぞれ位置するものと仮定する(時間座標は任意)。この様な単純化は、環境条件変化の要因として、外部からの異種地下水の進入や放射線分解等の廃棄物と地下水との相互作用に起因するものが多く想定されることから、少なくとも第一回目の解析の前提として適当なものと考えられる。

上記シャドウモデルでは、一つの楕円は、以下の式で与えられるものである。

$$(10) \quad \frac{\{\cos\theta(\tau - \tau_0) - \sin\theta(\rho - \rho_0)\}^2}{a^2} + \frac{\{\sin\theta(\tau - \tau_0) + \cos\theta(\rho - \rho_0)\}^2}{b^2} = 1$$

ただし、各パラメータの意味は図5.3.1-1の通りである。図5.3.1-2に統計的に作成したシャドウモデルの例を示す。

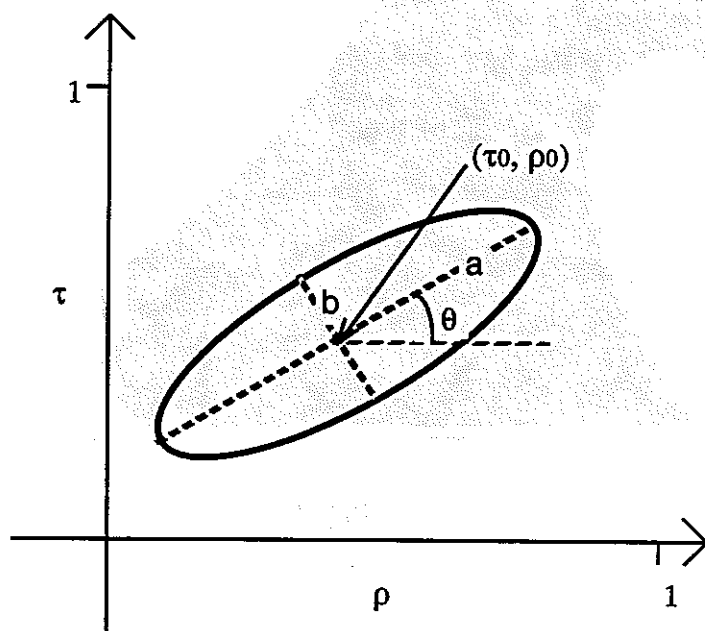


図5.3.1-1 環境条件変化を記述するためのシャドウモデルの概念図

### 5.3.2 核種移行解析の結果

前節に述べたシャドウモデルを用いて核種移行解析を実施した。シャドウモデルに含まれる各パラメータについて計算対象とした数値範囲、及び分布形を表5.3.2-1に示す。

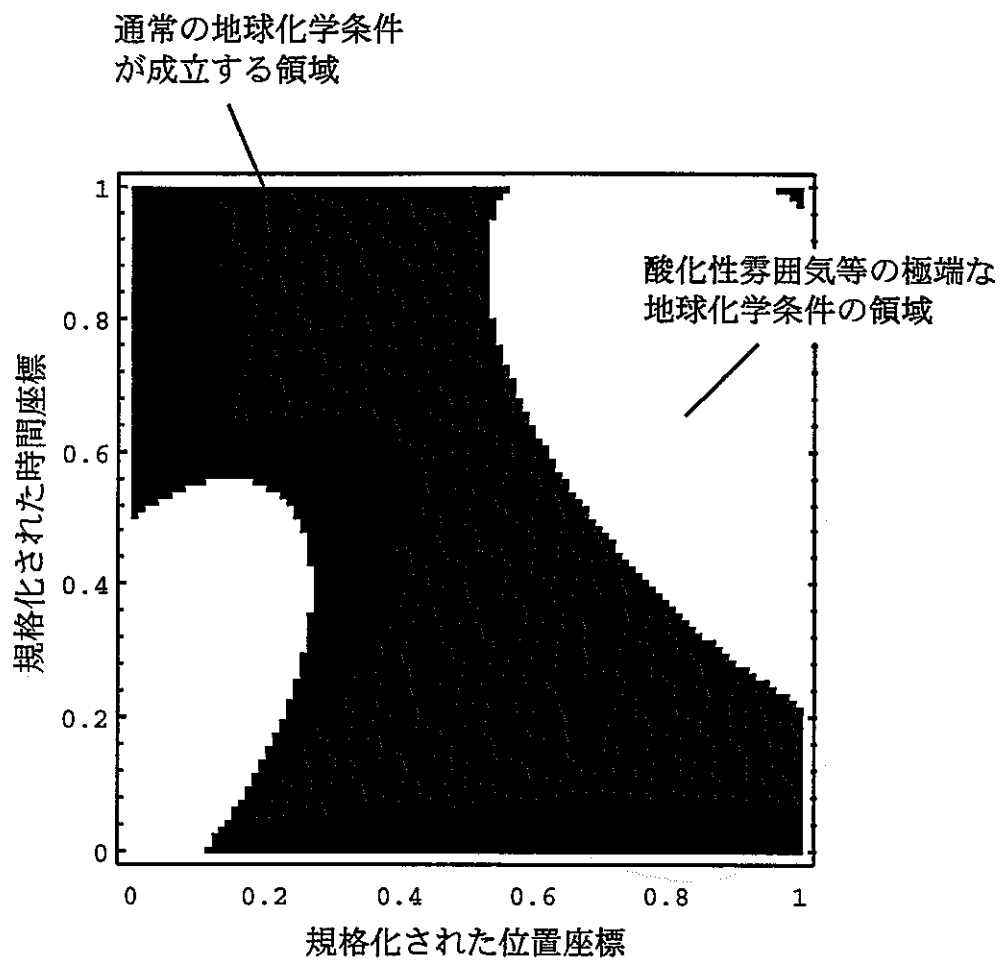


図5.3.1-2 環境条件変化のシャドウモデルによる表現の例

表5.3.2-1 一定核種移行プロセスについて種々の環境条件変化を考慮した解析の条件

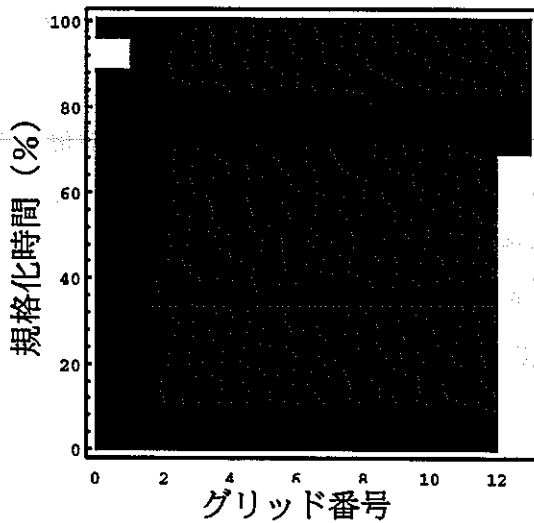
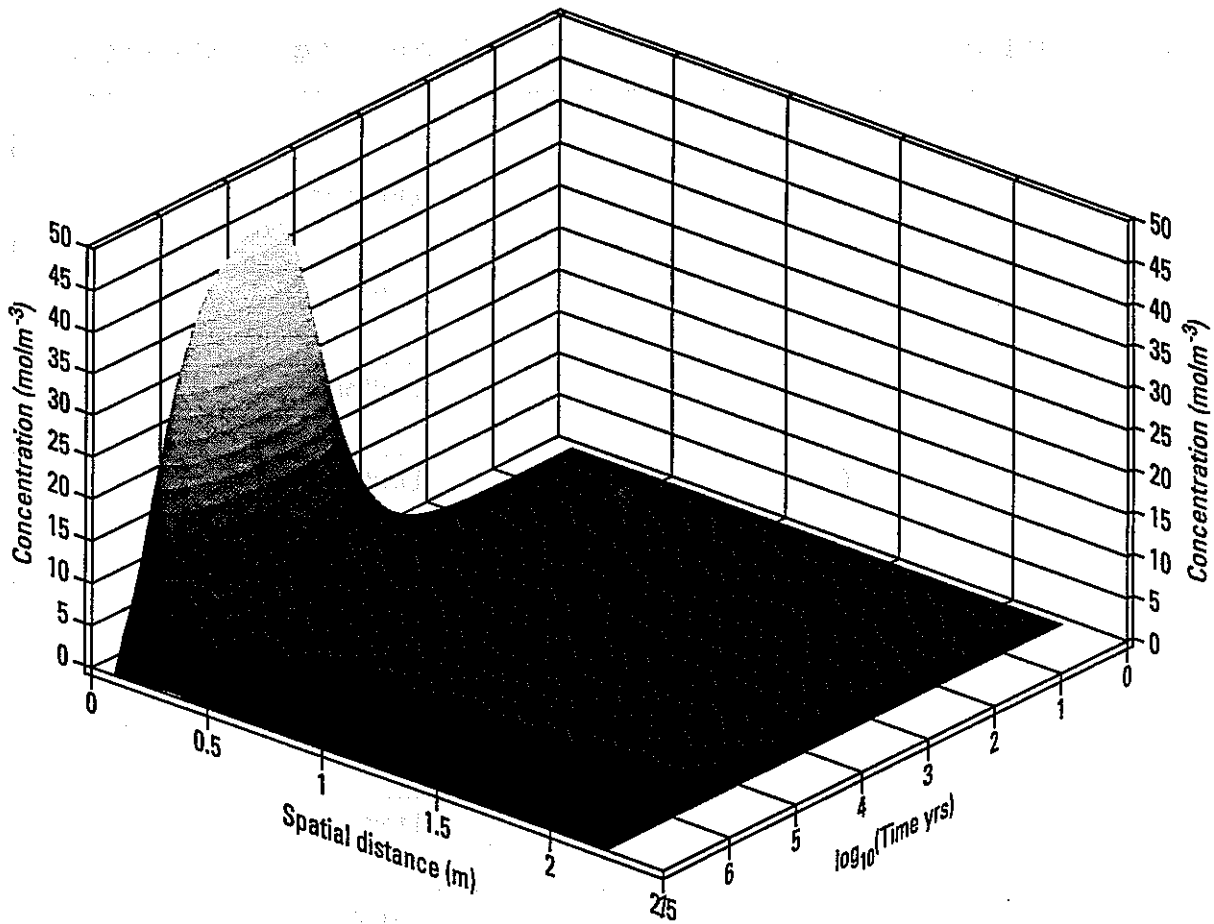
パラメータ	範囲	分布形
$\tau_0^1$	0 - 1	Uniform
$\rho^1$	0	固定
$\theta^1$	0 - $\pi/2$	Uniform
$a^1$	0 - 1	Uniform
$b^1$	0 - 1	Uniform
$\tau_0^2$	0 - 1	Uniform
$\rho^2$	1	固定
$\theta^2$	0 - $\pi/2$	Uniform
$a^2$	0 - 1	Uniform
$b^2$	0 - 1	Uniform

ただし $\theta$ については、 $a$  及び  $b$ の対称性から $0 - \pi/2$ の範囲で全ての可能性を網羅できることに注意を要する。なお、他のパラメータについては、ゆるみ域内地下水流量以外全て3.に述べた解析と同一である。ゆるみ域内地下水流量については、環境変動の影響が顕在化するよう、廃棄体一体当たり $100\text{m}^3/\text{年}$ という上限に近い数値を用いた（ダルシー流速 $1\text{m}/\text{年}$ として、 $2\text{km}$ 四方の処分場の総流量を4万本の廃棄体で均等に割り当てた数値）。人工バリア中核種濃度分布の経時変化をNp-237を例として図5.3.2-1から3にまとめる。図5.3.2-3の全濃度分布の経時変化は、明らかに沈澱フロントの形成とその伝播を示している。

### 5.3.3 感度解析

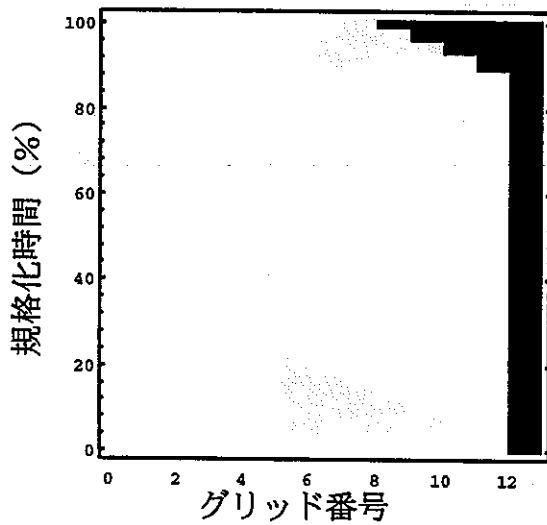
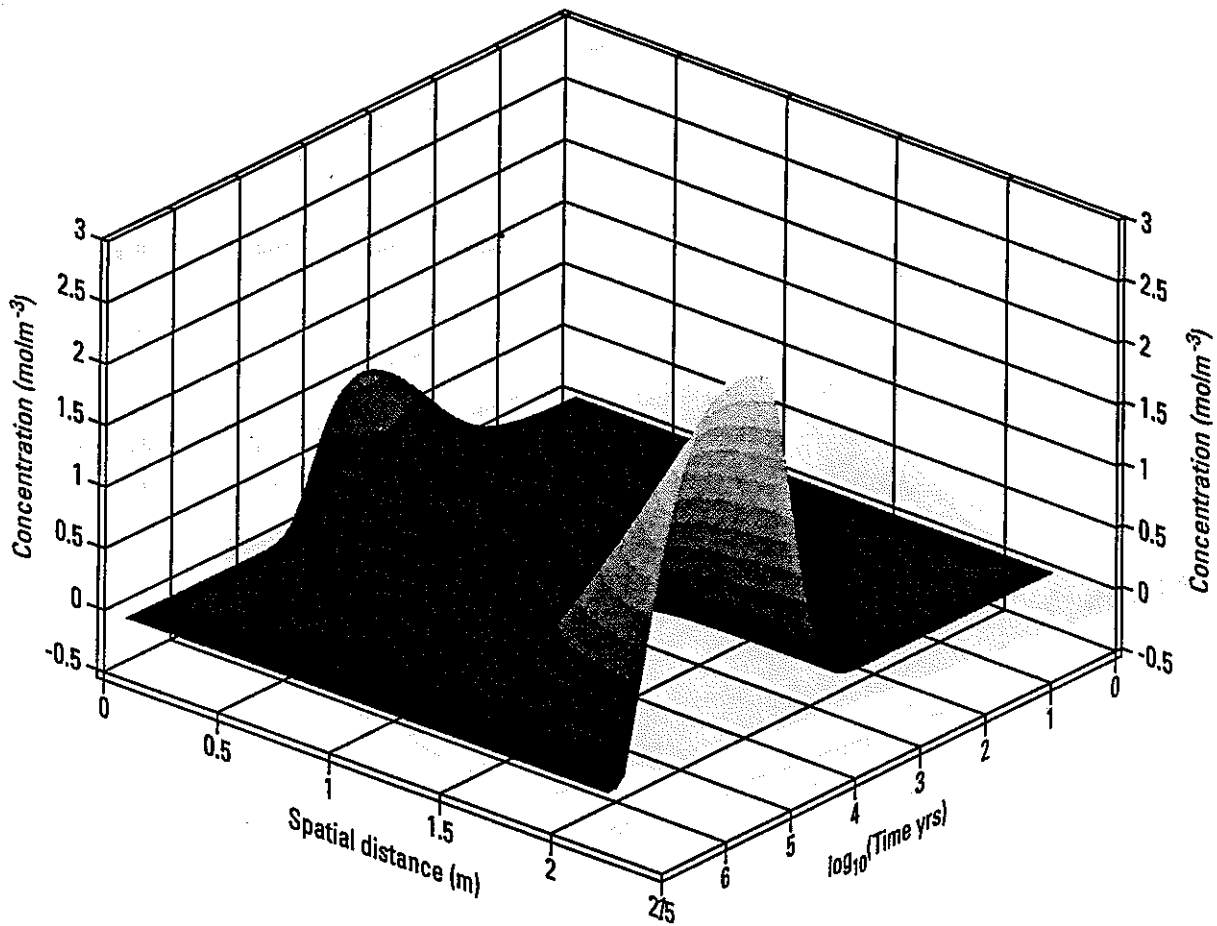
#### (1) ランク回帰分析

前節までに述べたシャドウモデルは一定環境下で核種移行挙動を種々に変化させた場合



グリッド1 ; ガラス固化体  
 グリッド2 ; オーバーパック  
 グリッド3~12 ; 緩衝材  
 グリッド13 ; ゆるみ域

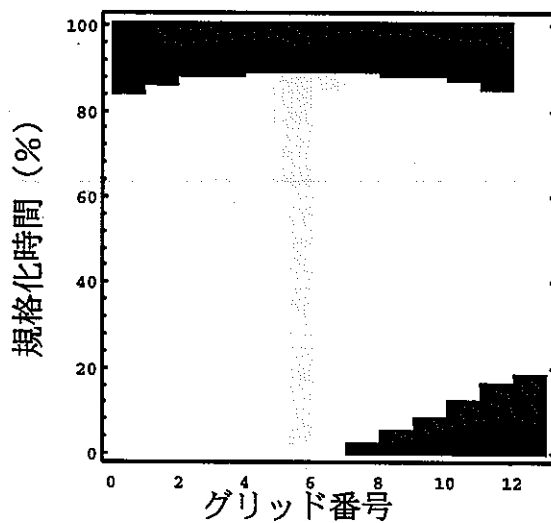
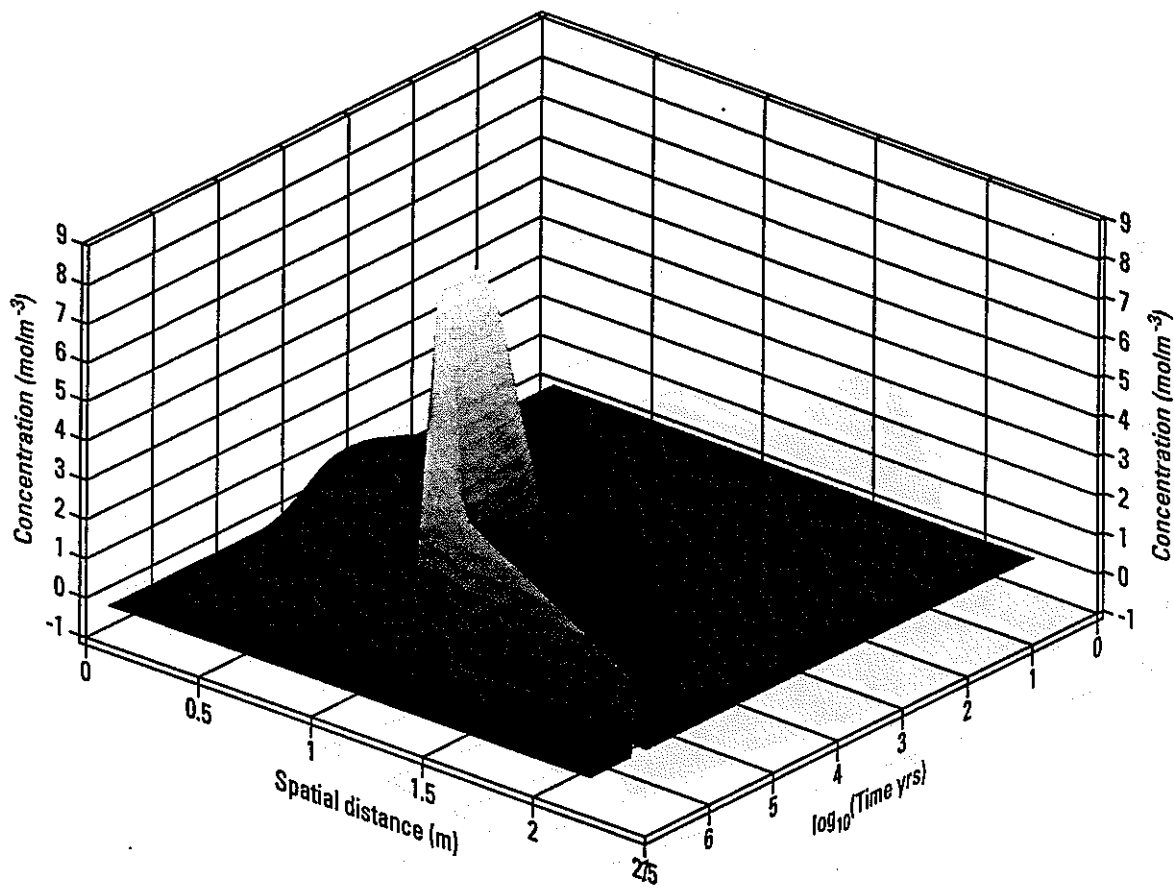
図5.3.2-1 環境条件変化についてのシャドウモデル及び対応する計算結果  
 (Np-237 全濃度分布の時間変化) の例 (1)



グリッド1; ガラス固化体  
 グリッド2; オーバーパック  
 グリッド3~12; 緩衝材  
 グリッド13; ゆるみ域

図5.3.2-2 環境条件変化についてのシャドウモデル及び対応する計算結果  
 (Np-237 全濃度分布の時間変化) の例 (2)





グリッド1；ガラス固化体  
 グリッド2；オーバーパック  
 グリッド3～12；緩衝材  
 グリッド13；ゆるみ域

図5.3.2-3 環境条件変化についてのシャドウモデル及び対応する計算結果 (Np-237 全濃度分布の時間変化) の例 (3)

のシャドウモデルよりも複雑なものであり、特に、感度解析という観点からは非線形性に加えて各パラメータについての偏微分係数が必ずしも単調なものではないという特徴を有する。このため、前項の解析で適合性の高かったランク回帰分析もこのモデルに対しては有効な感度解析手法とはならないことが予想される。実際、ランク回帰モデルをステップ5まで適用した結果、図5.3.3-1のスクアッタープロットに示す通り、回帰モデルの適合性は有意なものではなく、多重相関係数も0.22と非常に小さい数値を示している。これらのことから、本モデルについては従来の感度解析とは全く異なるアプローチが必要であることは明らかである。特に、図5.3.3-1は幅広い入力パラメータ値にわたって一定の最大核種放出率が生じていることを示しており、このような傾向は既存の回帰モデルで取り扱うことが極めて困難なものである。

## (2) SVDによるパターン認識

### ① 基本概念及び手法

従来の感度解析手法に代わり、ここではSVD(Singular Value Decomposition)によるパターン認識の手法を用いることとする。SVDはカオスを含む複雑な時系列データの分析等に近年活発に利用されている数学的な手法であり、その基本的な概念は次の通りである。

#### 定理1

$m$ 個の成分を持つ $n$ 個のデータ  $x_i | x_i \in \mathbb{R}^m, i=1, 2, \dots, n$  を列ベクトルとする $m$ 行 $n$ 列の行列を $X$ とする。(但し、平均が0となる様、予め調整されているものとする。勿論、このことによって一般性は失われない。)この時、以下の様な操作が必ず可能である。但し、 $(\cdot)$ は内積を表すものとする。

i)  $\mathbb{R}^m$ の単位ベクトルの中から、 $X$ の各列ベクトルの該当する単位ベクトル方向の成分

$$(x_{i \cdot n}) \text{の分散 } n^T (X X^T) n = \sum_{i=1}^n (x_{i \cdot n})^2 \text{を最大にするものを選び、} n_1 \text{とする。}$$

ii) 次に、 $n_1$ と直交する単位ベクトルのうち、上と同じく射影成分の分散を最大にするものを選び、 $n_2$ とする。そして、 $m$ 個の単位ベクトルが得られるまでこの操作を続ける。

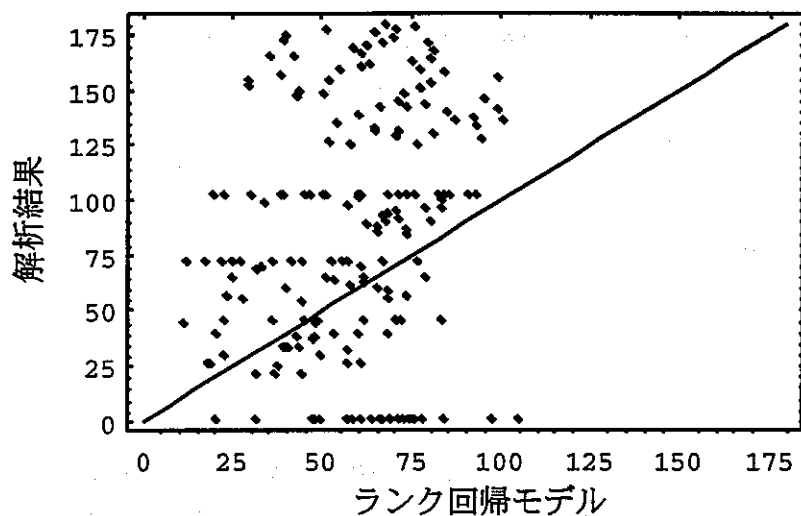


図5.3.3-1 環境条件変動を考慮したNp-237最大放出率解析結果  
に対するランク回帰分析の結果

上の定理で得られる $m$ 個の単位ベクトルは、明らかに $\mathbb{R}^m$ における正規直交基底となる。そして更に、次の重要な定理が得られる。

## 定理2 (Singular Value Decomposition)

定理1の操作で得られる正規直交基底は、行列 $X$ とその転置行列との積 $XX^T$ の $m$ 個の規格化された固有ベクトルと一致する。また、 $x_i$ の各 $n_k$ 方向の成分の二乗和（即ち、 $n_k$ 方向の分散）は $XX^T$ の $n_k$ に対応する正の実固有値 $\lambda_k$ に等しい。

$$\lambda_k = \sum_{i=1}^n (x_i \cdot n_k)^2$$

以上、証明は例えば[Broomhead and King, 1986]を参照のこと。

概念的に言えば、SVDは、ある多次元のデータ群が与えられた時に、この多次元の空間の中で変動が大きい軸をその大きさの順に抽出することを可能とするものである。この機能の故に、SVDは現在さまざまな分野で利用されている。例えば、時系列データの解析においては、非常に高い次元のデータ空間の中から有意な影響をもっている軸のみ（つまり明らかに0ではない様な $XX^T$ の固有値に対応する固有ベクトルの方向）を抽出して実用上十分な部分空間を定義するという目的に用いられている。

さて、この様なSVDを我々の現在の問題に適用する方策を以下に考えてみる。

まず、スキャッタープロットを、最大核種放出率に応じて幾つかの範囲に分割する。こうして得られた各グループ $G_j$ に含まれる $n_j$ 個の計算ケースのシャドウモデルは、前出の回帰分析結果からもわかる様に多種多様な特徴を持っているものと考えられる。しかしながら、結果として生じている最大核種放出率はほぼ同様なものであることから、結果について真に敏感な特徴はあまり変化していない筈である。逆に、結果に影響を及ぼさない様な特徴は大幅に変動しているものと考えられる。以下行う解析の主眼は、この「結果に余り影響を与えないシャドウモデルの特徴」をSVDによって見だし、この結果から翻って「結果に大きな影響を及ぼすシャドウモデルの特徴」を明らかにしようというものである。より具体的には、次の手順で解析を行う。

- i) スキャッタープロットを、最大核種放出率に基づきN個のグループ $G_j$ に分割する。
- ii) 各グループ $G_j$ に含まれる $n_j$ 個の計算ケースに対応するシャドウモデルの8個の入力パラメータそれぞれの平均値を成分とするベクトル $y_{j0}$ を作成する。
- iii) 同様にグループ $G_j$ に含まれる $n_j$ 個の計算ケース自体について $y_{ji}$ を作成する。
- iv) 定理1におけるデータベクトル $x_{ji}$ をグループ内での変換 $x_{ji} = y_{ji} - y_{j0}$ によって定義し、SVDによりその主軸に対応する固有ベクトル $n_{j1}$ を見いだす。

ここで、各グループ $G_j$ における固有ベクトル $n_{j1}$ は、「結果に余り影響を与えないシャドウモデルの変換」であり、以下、低感度変換と呼ぶこととする。また、逆に、この低感度変換によって影響を受けない様なシャドウモデルの特徴は、各グループに含まれる多数の計算ケースがそれぞれ同じグループ内の他のケース達と共有しているものであると考えられることから、低感度変換によって保存される様なシャドウモデルの特徴を各グループの代表的特性とする。つまり、SVDにより各グループの代表的な特性のパターンが認識されることとなる。

以上が解析手法の骨子である。以下に、Np-237を例としてこの手法を適用した結果についてまとめる。

## ② 人工バリア中核種移行問題への適用

図5.3.3-2に、Np-237最大放出率の0.01桁刻みの頻度分布を示す。図から明らかな通り、分布は3カ所の非常に鋭いピークを持った分布を有する。このことは、ある広いクラスシャドウモデルがこれら二つの最大放出率に収束することを示唆している。従って、これらのピークの部分を無視して一定間隔で区間分割をすることは合理的ではない。そこで、図5.3.3-2の核種放出率の範囲を、「ピーク値をまたがない最大1桁幅の区間」に分割することとし、全計算ケースを以下の7グループに分割するものとする。

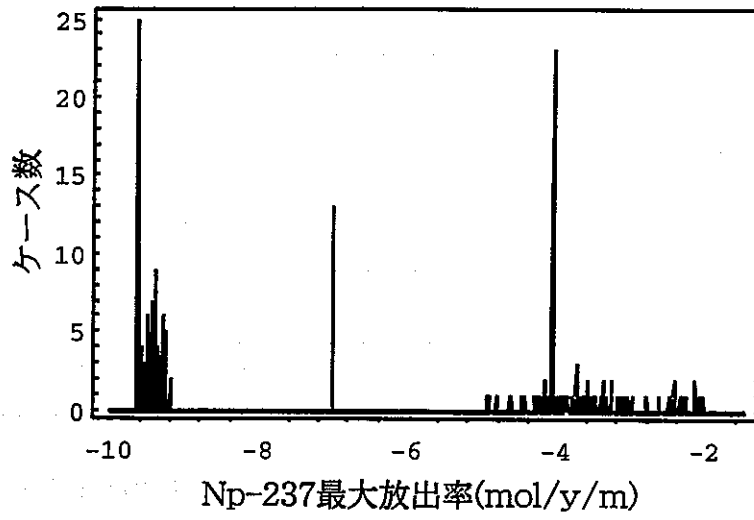


図5.3.3-2 Np-237 最大放出率の頻度分布

	Log (最大放出率) の範囲
グループ1	-2~-3
グループ2	-3~-4.04
グループ3	-4.04~-4.05 (ピーク1)
グループ4	-4.05~-5
グループ5	-6.98~-6.99 (ピーク2)
グループ6	-9~-9.61
グループ7	-9.61~-9.62 (ピーク3)

各グループに対してSVDを行い算出された固有値を図5.3.3-3にまとめる。非零の固有値について明確なしきい値はないが、ここでは、簡単のため3番目までの固有値を選択し、それぞれを第一～第三変換とよぶこととする。これは、低感度変換を感度の低い順に並べたものと言うことができる。表5.3.3-1に、各グループにおける低感度変換をまとめる。

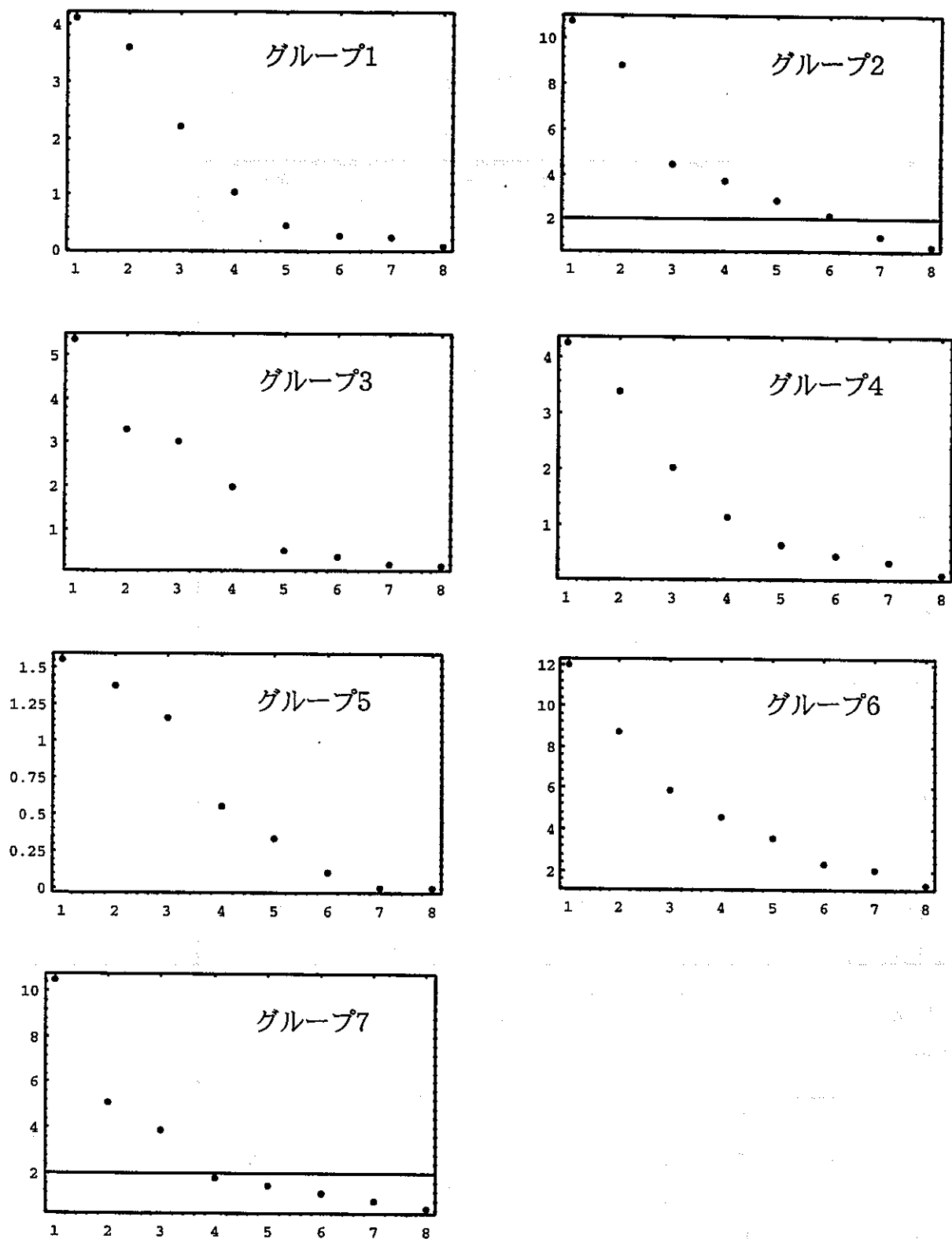


図5.3.3-3 各グループに対するSVDにより得られた固有値



表5.3.3-1(1) 各グループにおける低感度変換\* (グループ1)

	第一変換	第二変換	第三変換
内側楕円の 中心時刻 $\tau_0^1$	0.016	-0.073	-0.21
内側楕円の 角度 $\theta^1$	-0.15	0.070	0.53
内側楕円の 第1軸長さ $a^1$	0.72	-0.62	0.19
内側楕円の 第2軸長さ $b^1$	0.60	0.75	0.13
外側楕円の 中心時刻 $\tau_0^2$	-0.11	-0.022	-0.33
外側楕円の 角度 $\theta^2$	0.15	0.20	-0.43
外側楕円の 第1軸長さ $a^2$	0.084	-0.018	0.22
外側楕円の 第2軸長さ $b^2$	-0.24	0.094	0.52

\*注：第一から第三変換は、それぞれ、SVDによって求められた固有ベクトルのうち対応する固有値の最も大きいものから三番目のものまでに対応する。換言すれば、これは低感度変換を感度の低い順に並べたものであるといえることができる。

表5.3.3-1(2) 各グループにおける低感度変換 (グループ2)

	第一変換	第二変換	第三変換
内側楕円の 中心時刻 $\tau_0^1$	-0.10	-0.21	0.35
内側楕円の 角度 $\theta^1$	-0.046	-0.13	-0.75
内側楕円の 第1軸長さ $a^1$	0.89	0.32	-0.013
内側楕円の 第2軸長さ $b^1$	-0.36	0.89	0.070
外側楕円の 中心時刻 $\tau_0^2$	-0.17	-0.17	0.057
外側楕円の 角度 $\theta^2$	0.20	-0.10	0.15
外側楕円の 第1軸長さ $a^2$	0.031	0.048	-0.084
外側楕円の 第2軸長さ $b^2$	-0.037	0.10	-0.52

表5.3.3-1(3) 各グループにおける低感度変換 (グループ3)

	第一変換	第二変換	第三変換
内側楕円の 中心時刻 $\tau_0^1$	-0.011	0.27	0.27
内側楕円の 角度 $\theta^1$	-0.046	0.29	0.012
内側楕円の 第1軸長さ $a^1$	0.83	0.34	-0.12
内側楕円の 第2軸長さ $b^1$	0.44	-0.79	0.27
外側楕円の 中心時刻 $\tau_0^2$	-0.23	-0.0097	0.46
外側楕円の 角度 $\theta^2$	0.013	-0.12	-0.29
外側楕円の 第1軸長さ $a^2$	0.24	0.27	0.18
外側楕円の 第2軸長さ $b^2$	-0.073	-0.14	-0.71

表5.3.3-1(4) 各グループにおける低感度変換 (グループ4)

	第一変換	第二変換	第三変換
内側楕円の 中心時刻 $\tau_0^1$	0.37	-0.047	0.49
内側楕円の 角度 $\theta^1$	-0.051	0.18	-0.46
内側楕円の 第1軸長さ $a^1$	0.53	0.62	0.31
内側楕円の 第2軸長さ $b^1$	0.67	-0.28	-0.48
外側楕円の 中心時刻 $\tau_0^2$	0.078	-0.56	0.36
外側楕円の 角度 $\theta^2$	-0.057	0.34	0.0058
外側楕円の 第1軸長さ $a^2$	-0.065	0.27	-0.18
外側楕円の 第2軸長さ $b^2$	0.34	-0.098	-0.26

表5.3.3-1(5) 各グループにおける低感度変換 (グループ5)

	第一変換	第二変換	第三変換
内側楕円の 中心時刻 $\tau_0^1$	-0.081	0.12	-0.21
内側楕円の 角度 $\theta^1$	-0.18	-0.11	-0.76
内側楕円の 第1軸長さ $a^1$	0.42	-0.032	-0.33
内側楕円の 第2軸長さ $b^1$	0.20	-0.93	0.20
外側楕円の 中心時刻 $\tau_0^2$	0.56	0.29	0.44
外側楕円の 角度 $\theta^2$	0.15	0.040	-0.18
外側楕円の 第1軸長さ $a^2$	-0.056	-0.12	-0.015
外側楕円の 第2軸長さ $b^2$	-0.64	-0.083	0.0076

表5.3.3-1(6) 各グループにおける低感度変換 (グループ6)

	第一変換	第二変換	第三変換
内側楕円の 中心時刻 $\tau_0^1$	0.22	0.038	-0.66
内側楕円の 角度 $\theta^1$	-0.028	0.057	0.60
内側楕円の 第1軸長さ $a^1$	0.43	0.85	0.040
内側楕円の 第2軸長さ $b^1$	0.86	-0.39	0.12
外側楕円の 中心時刻 $\tau_0^2$	-0.038	0.21	-0.012
外側楕円の 角度 $\theta^2$	0.17	-0.13	0.21
外側楕円の 第1軸長さ $a^2$	-0.0046	-0.24	-0.16
外側楕円の 第2軸長さ $b^2$	-0.013	0.018	-0.35

表5.3.3-1(7) 各グループにおける低感度変換 (グループ7)

	第一変換	第二変換	第三変換
内側楕円の 中心時刻 $\tau_0^1$	0.082	-0.10	0.28
内側楕円の 角度 $\theta^1$	-0.056	0.16	0.63
内側楕円の 第1軸長さ $a^1$	-0.76	0.36	0.039
内側楕円の 第2軸長さ $b^1$	-0.51	-0.77	0.12
外側楕円の 中心時刻 $\tau_0^2$	-0.19	0.22	0.21
外側楕円の 角度 $\theta^2$	-0.13	0.18	-0.60
外側楕円の 第1軸長さ $a^2$	0.23	-0.36	-0.014
外側楕円の 第2軸長さ $b^2$	0.23	0.21	0.31

図5.3.3-4から10は、起点となる各グループの平均的シャドウモデルを中心として3つの低感度変換をそれぞれ摂動として与えることにより作成したシャドウモデル群である。より具体的に言えば、平均的シャドウモデルを通過する低感度変換軸に全てのシャドウモ

デルを射影し、射影された範囲内から各6つのシャドウモデルを代表点としてサンプリングした（下図）。

$$S_{ki} = S_o + P_k \left\{ \tau_i \cdot \max_j \langle V_j, P_k \rangle + (1 - \tau_i) \min_j \langle V_j, P_k \rangle \right\}$$

但し、 $S_{ki}$  ; K番目の低感度変換により作成したi番目の内分点に対応するシャドウモデル

$S_o$  ; 平均的シャドウモデル

$P_k$  ; k番目の低感度変換（ベクトル）

$\tau_i$  ; i番目の内分比、 $0 \leq \tau_i \leq 1$

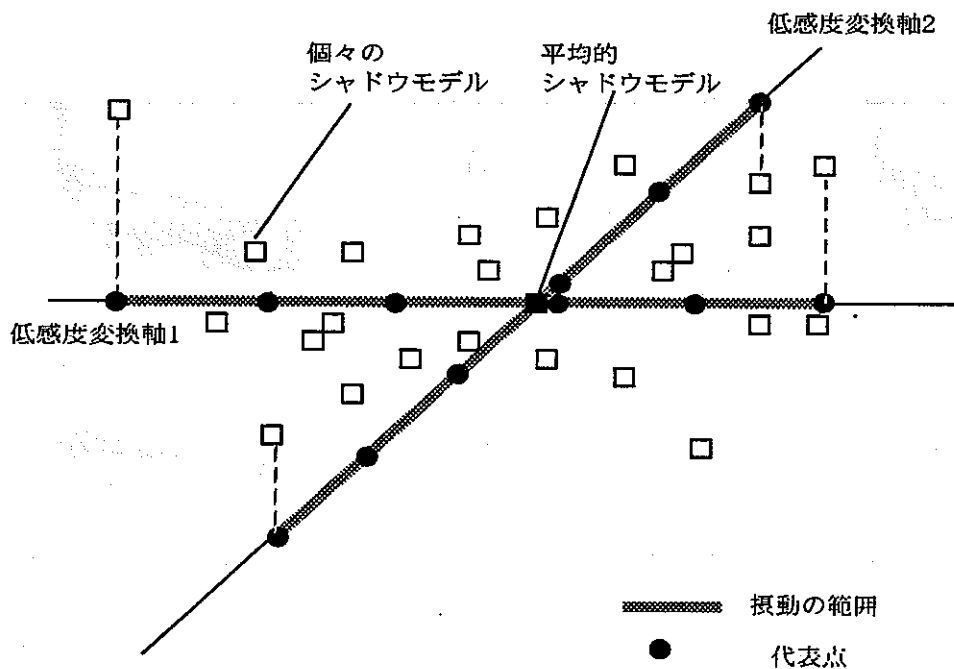
$j = 1, 2, \dots, N$ , Nはクラスター内のケース数

$V_j$  ; 各ケースに於けるシャドウモデル $S_j^*$ と $S_o$ との差ベクトル

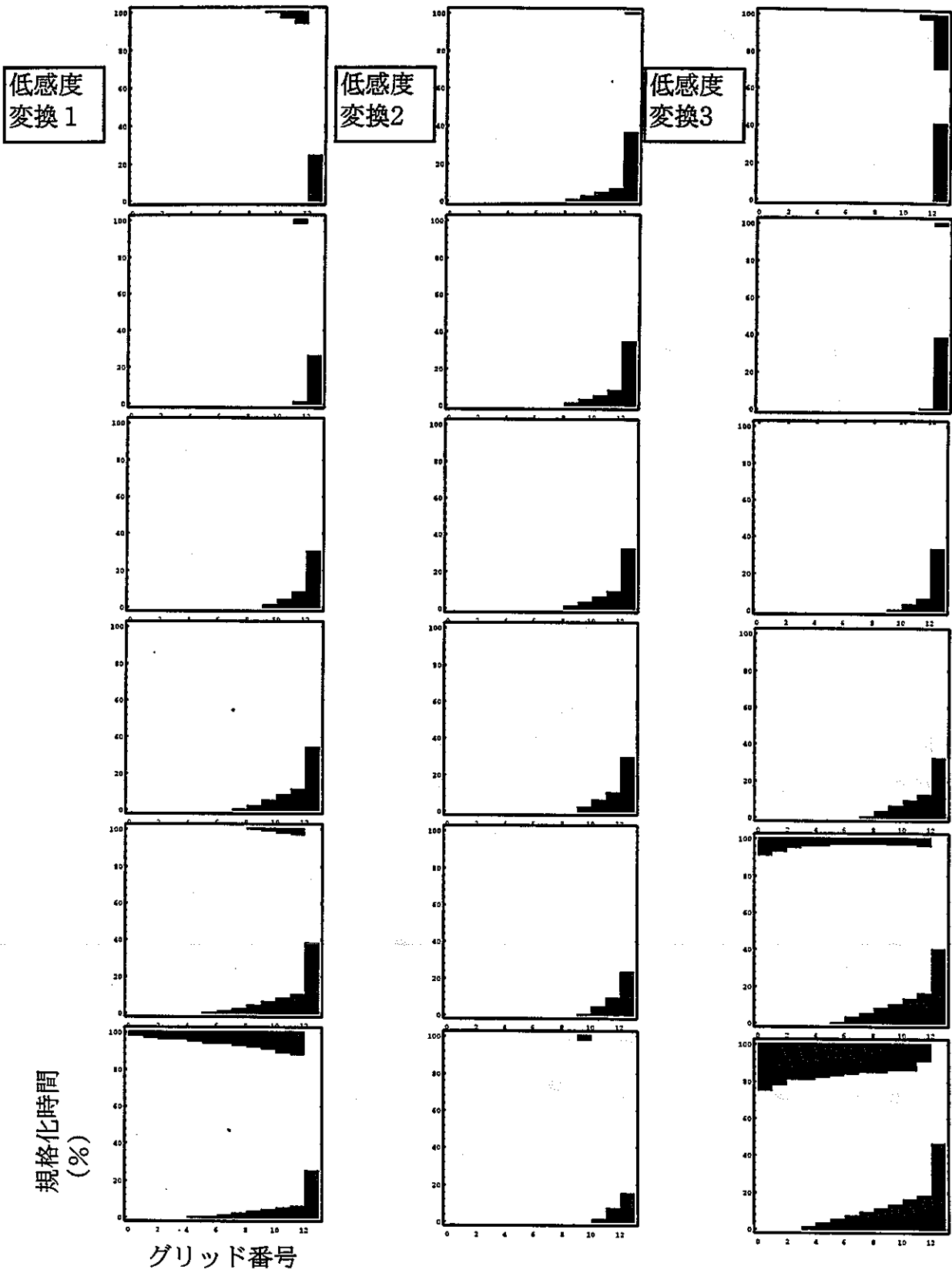
$$V_j = S_j^* - S_o$$

$\langle , \rangle$  ; 内積

図5.3.3-4から10において明らかなように、各グループに対する低感度変換によって図形的な特徴、従って、これらに対応する現象論的な特徴が保存されていることがわかる。これらの特徴は、各グループの大多数が有している共通のものであり、各グループに固有のものと考えることが出来る。表5.3.3-2に、各グループの特徴をまとめる。

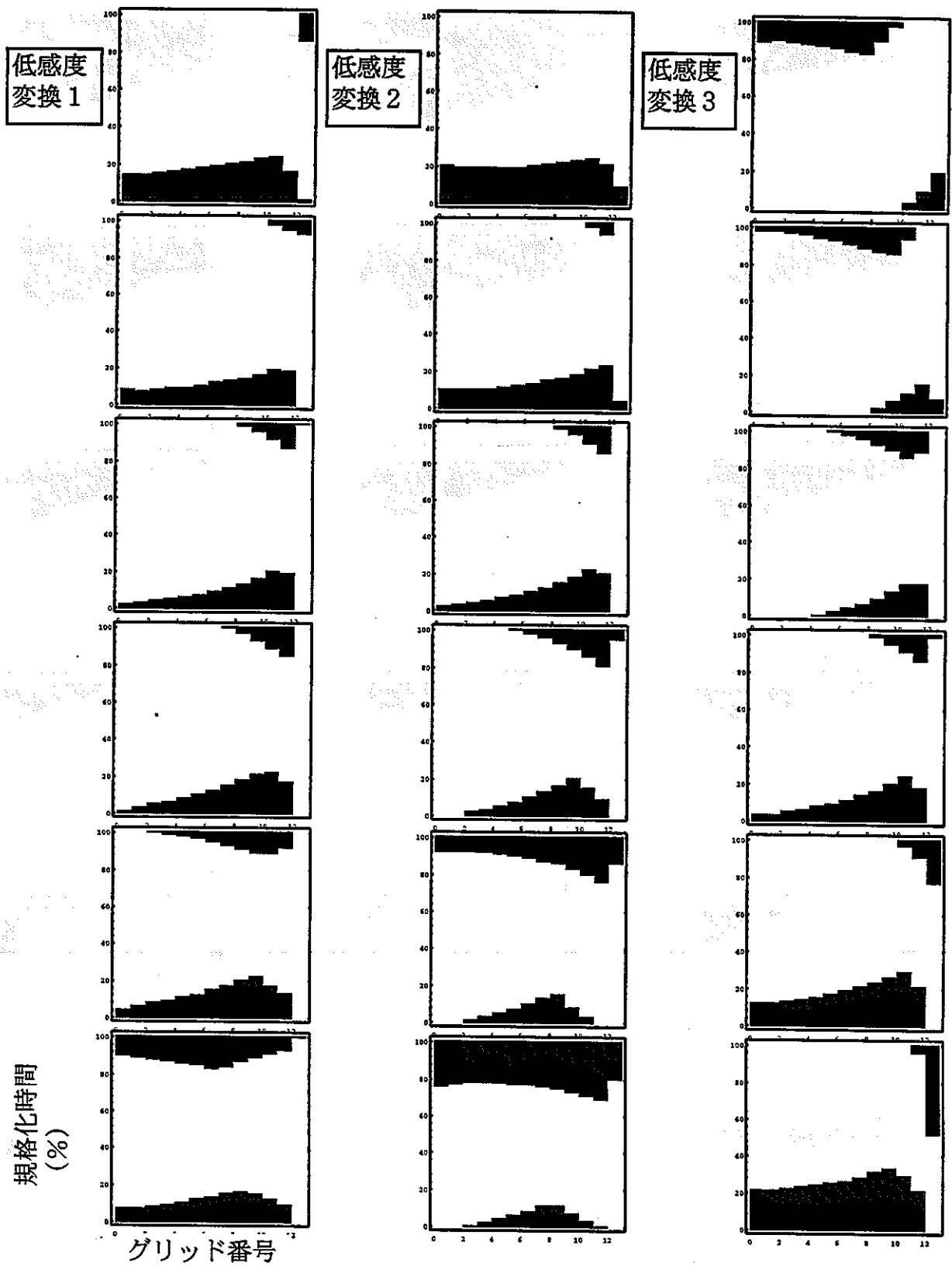






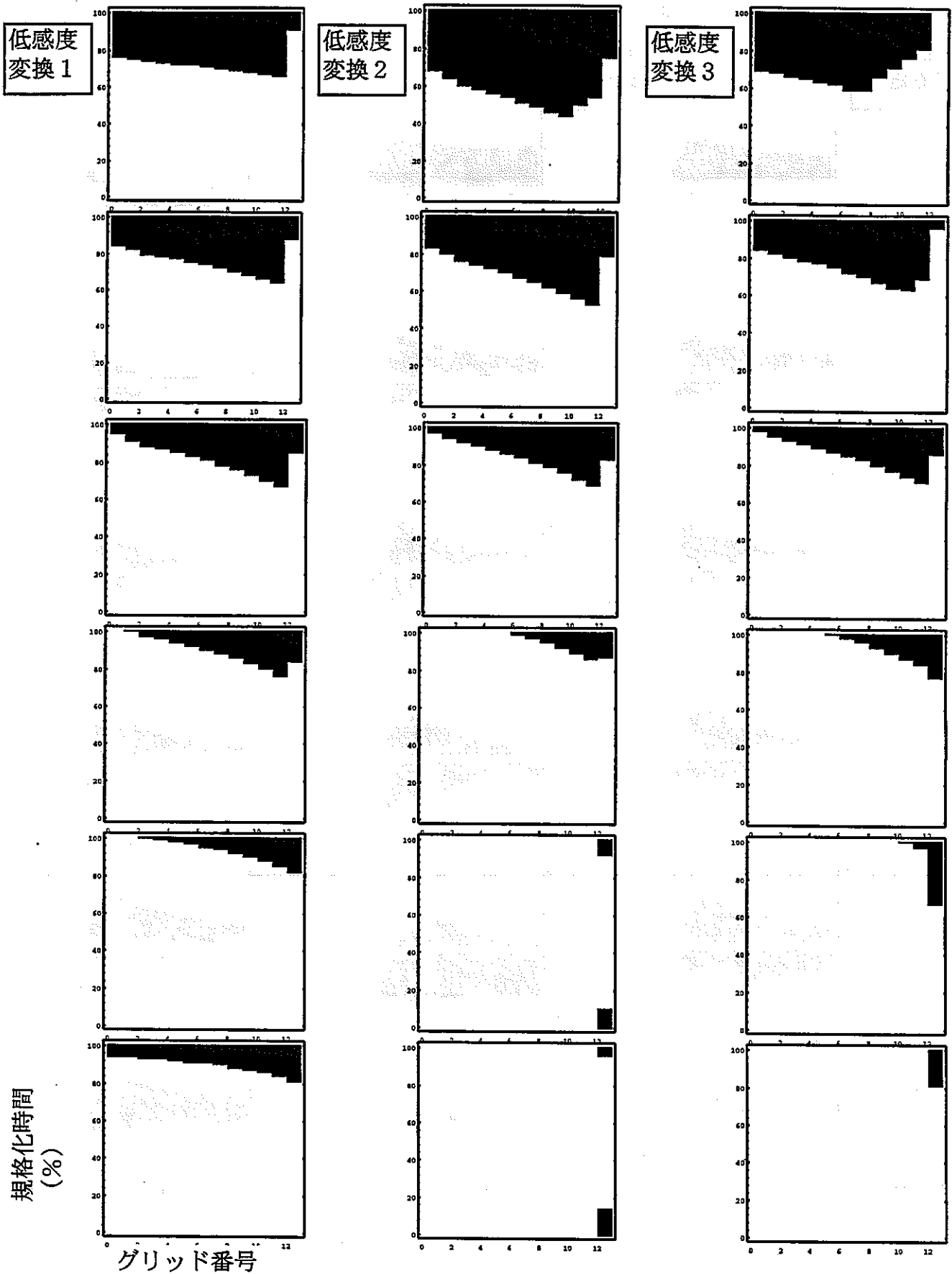
グリッド1 ; ガラス固化体, グリッド2 ; オーバーパック, グリッド3-12 ; 緩衝材, グリッド13 ; ゆるみ域

図5.3.3-4 グループ1に属するシャドウモデルの共通の特徴



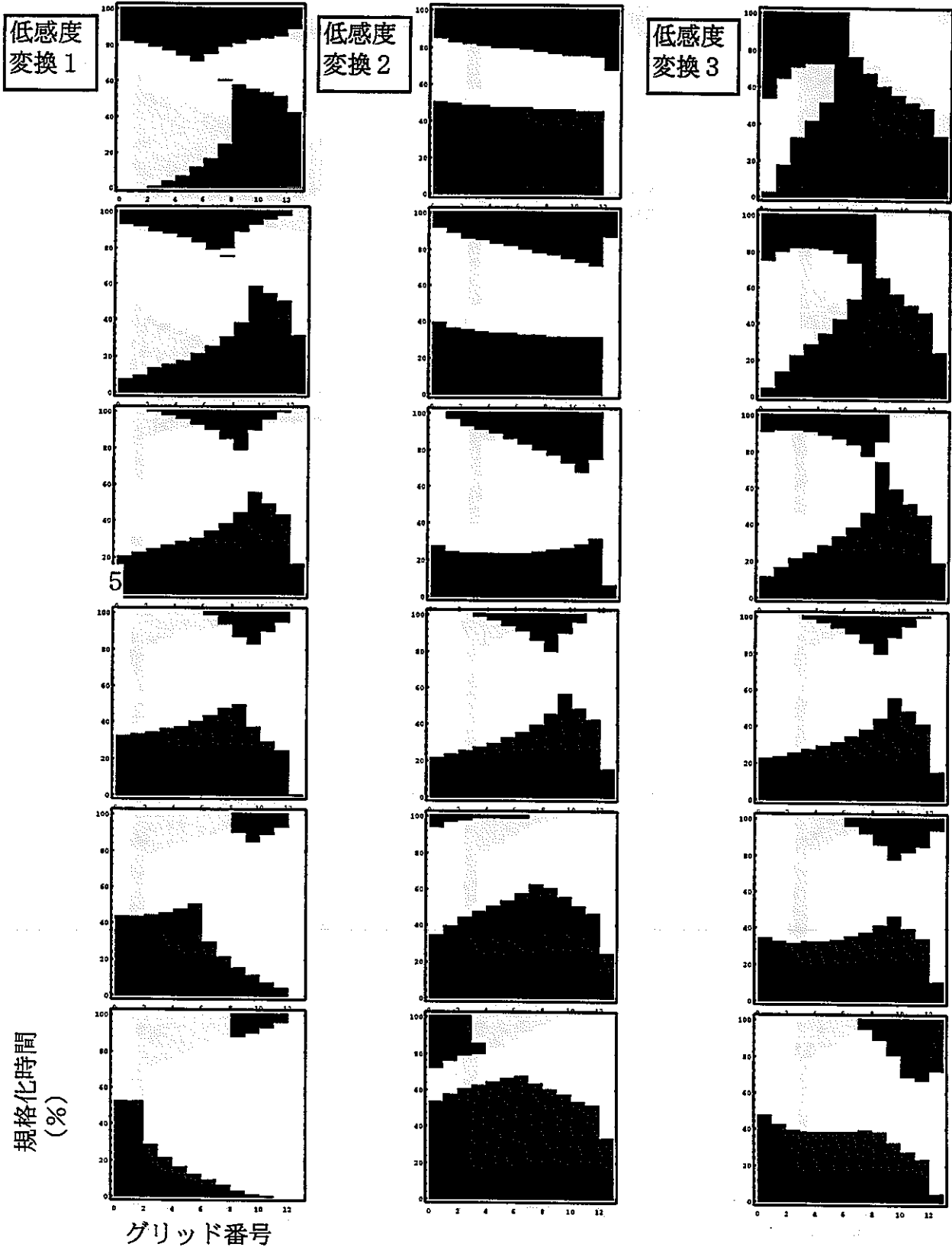
グリッド1 ; ガラス固化体, グリッド2 ; オーバーパック, グリッド3-12 ; 緩衝材, グリッド13 ; ゆるみ域

図5.3.3-5 グループ2に属するシャドウモデルの共通の特徴



グリッド1 ; ガラス固化体, グリッド2 ; オーバーパック, グリッド3-12 ; 緩衝材, グリッド13 ; ゆるみ域

図5.3.3-6 グループ3に属するシャドウモデルの共通の特徴



グリッド1 ; ガラス固化体, グリッド2 ; オーバーパック, グリッド3-12 ; 緩衝材, グリッド13 ; ゆるみ域

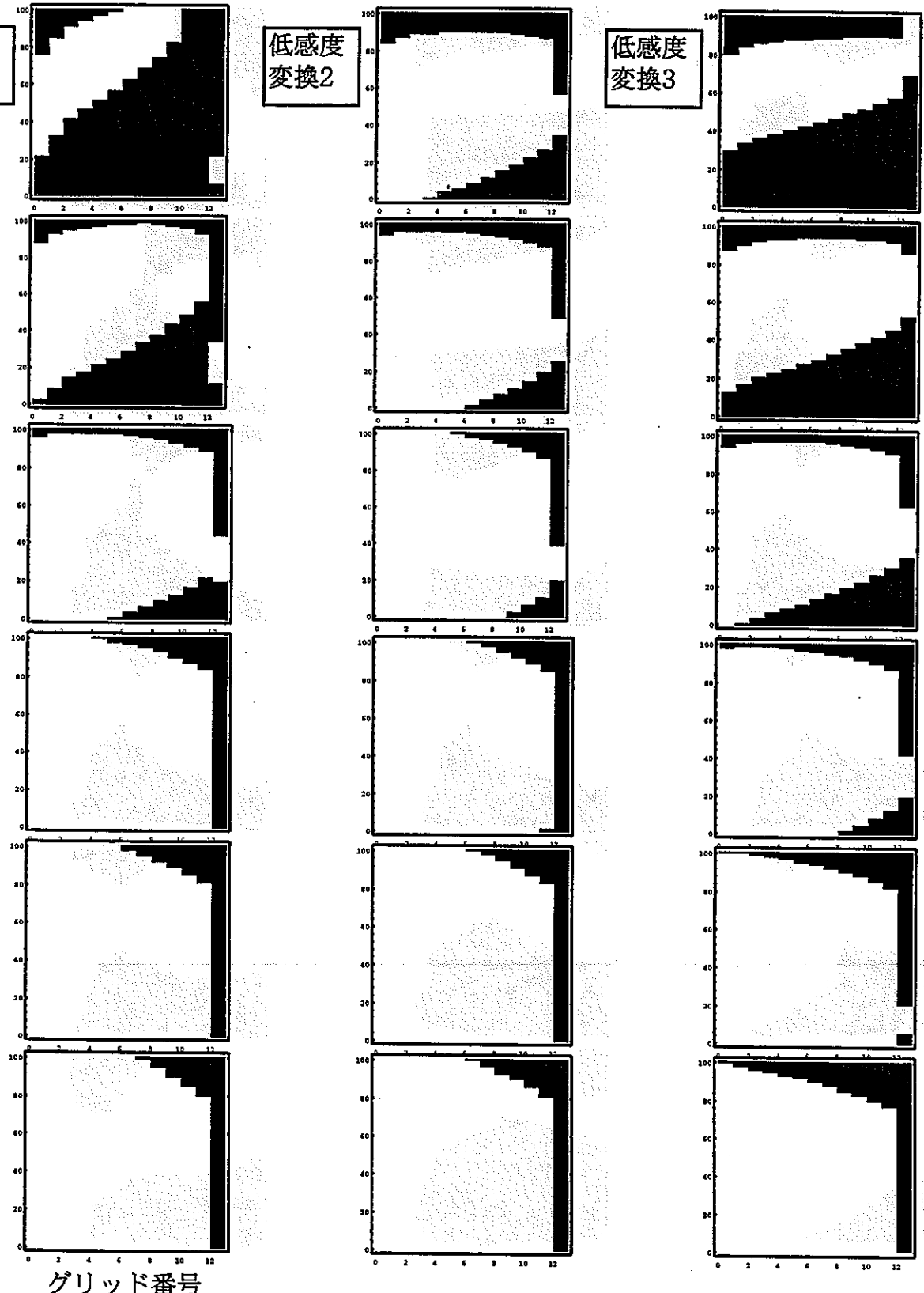
図5.3.3-7 グループ4に属するシャドウモデルの共通の特徴

低感度  
変換1

低感度  
変換2

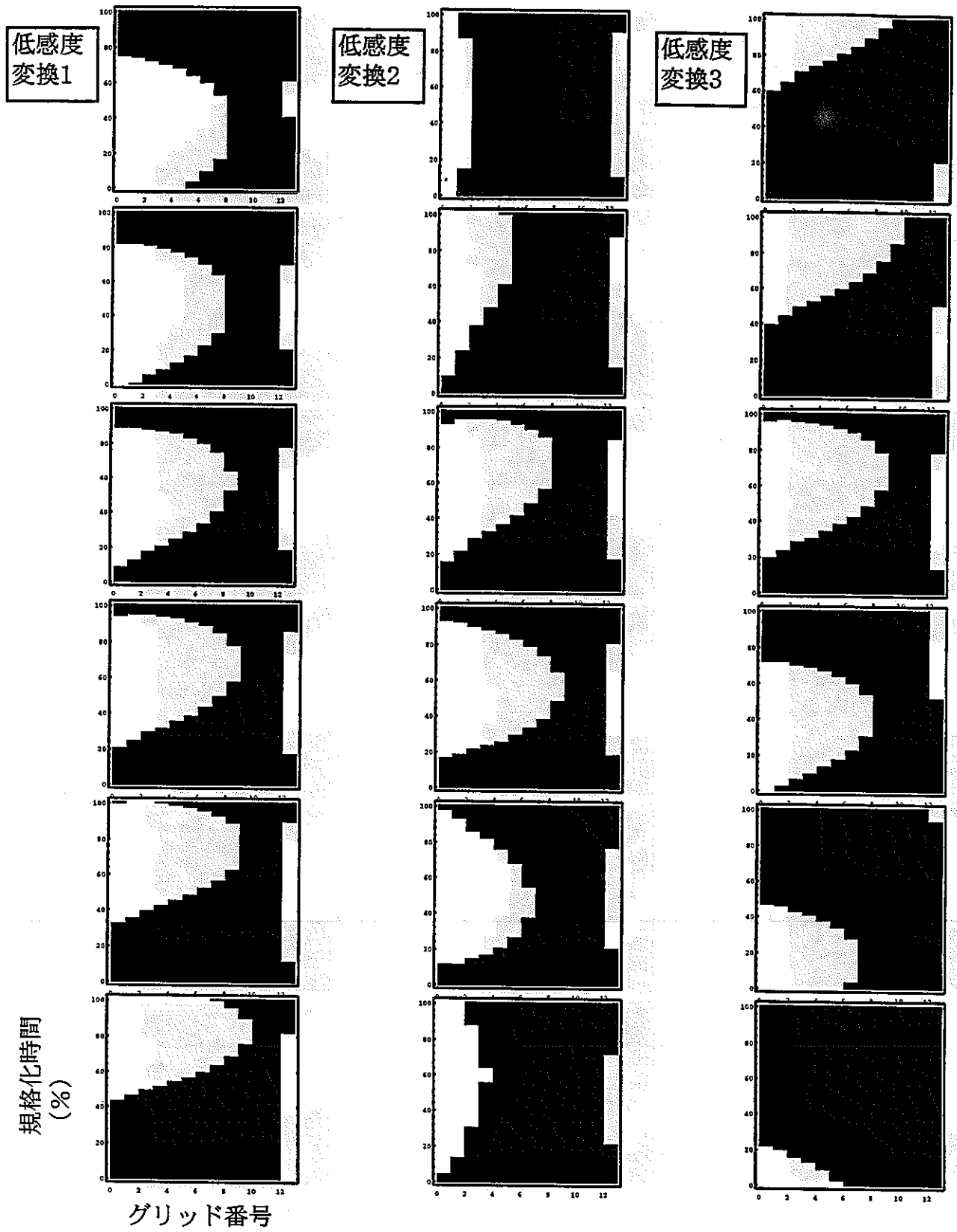
低感度  
変換3

規格化時間  
(%)



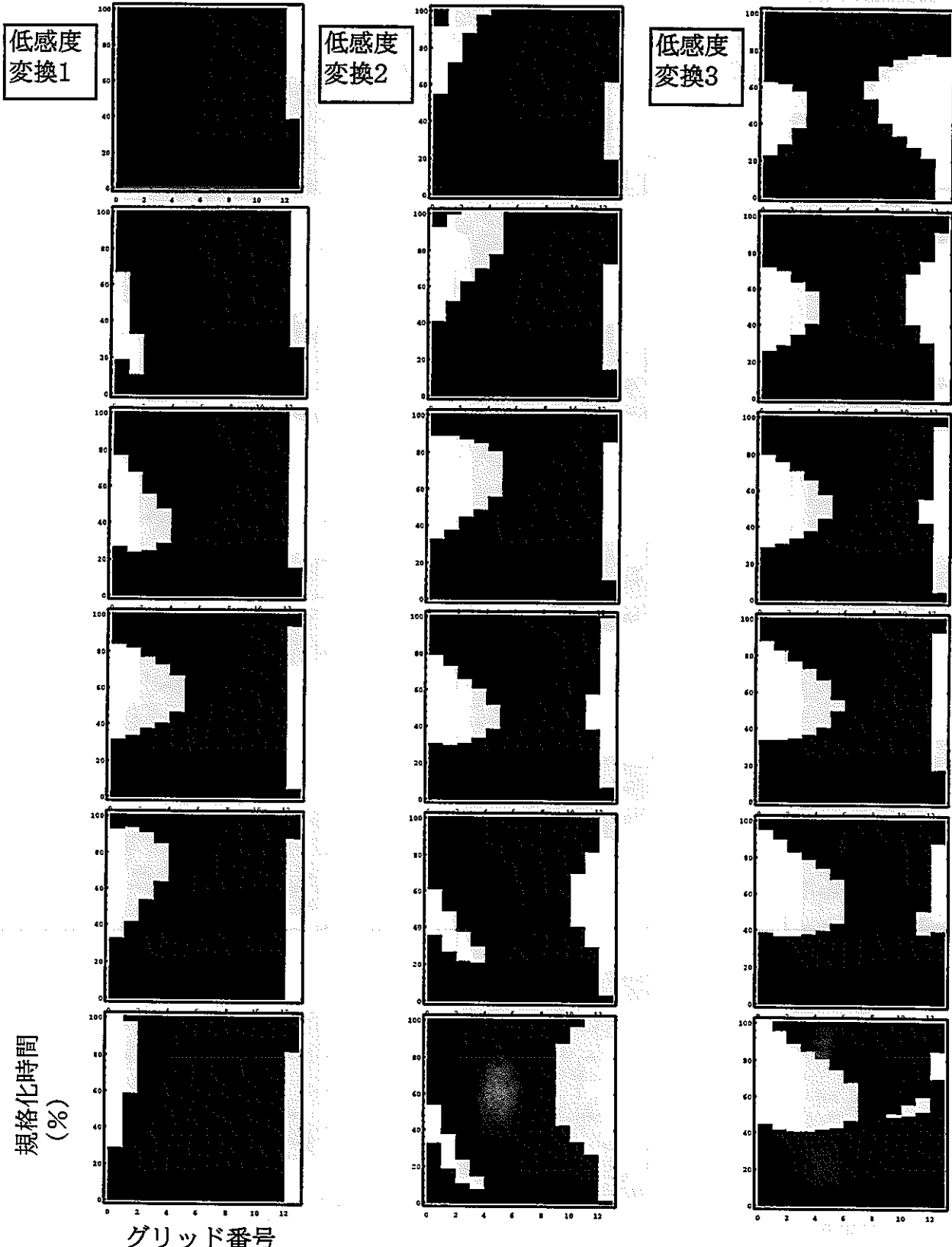
グリッド1 ; ガラス固化体, グリッド2 ; オーバーバック, グリッド3-12 ; 緩衝材, グリッド13 ; ゆるみ域

図5.3.3-8 グループ5に属するシャドウモデルの共通の特徴



グリッド1 ; ガラス固化体, グリッド2 ; オーバーバック, グリッド3-12 ; 緩衝材, グリッド13 ; ゆるみ域

図5.3.3-9 グループ6に属するシャドウモデルの共通の特徴



グリッド1 ; ガラス固化体, グリッド2 ; オーバーパック, グリッド3-12 ; 緩衝材, グリッド13 ; ゆるみ域

図5.3.3-10 グループ7に属するシャドウモデルの共通の特徴

表5.3.3-2 各グループにおけるシャドウモデルで保存されている  
図形的及び現象論的特徴

	低感度変換で保存され ている図形的な特徴	低感度変換で保存され ている現象論的な特徴
グループ1	第一軸の長い内側楕円が、最終グリッドで第二軸の長い外側楕円に交わる。	酸化性雰囲気等の地球化学フロントが内側から広がるにつれて核種の沈澱が外側に移行し、ゆるみ域内で外側からの同様のフロントに出会い溶解、さらに移流により速やかに散逸する。
グループ2	第一軸の長い内側楕円が、最終グリッドよりも手前で第二軸の長い外側楕円に交わる。	酸化性雰囲気等の地球化学フロントが内側から広がるにつれて核種の沈澱が外側に移行し、人工バリア内で外側からの同様のフロントに出会い溶解、拡散により緩やかに散逸する。
グループ3	r軸全体が内側楕円あるいは第二軸によって覆われる。	酸化性雰囲気等の極端な地球化学的条件がガラス浸出期間にニアフィールド全域に及び、このため、溶解度限界は全く作用しない。
グループ4	第一軸の長い内側楕円が、最終グリッドよりも手前で第二軸の長い外側楕円に交わる。	酸化性雰囲気等の地球化学フロントが内側から広がるにつれて核種の沈澱が外側に移行し、人工バリア内で外側からの同様のフロントに出会い溶解、拡散により緩やかに散逸する。
グループ5	第一軸の長い内側楕円が最終グリッド直前までいたるが、その後最終グリッドに外側楕円は存在しない。	核種の沈澱がゆるみ域にまで達するが、その後環境条件が変化しないために、ここで溶解度限界が機能し続ける。



グループ6	内側楕円が最も外側に至る点は外側楕円が最も内側に至る点よりも更に内側にある。	核種の沈殿が人工バリア内部にとどまり、その後環境条件が変化しないために、ここで溶解度限界が機能し続ける。
グループ7	内側楕円が最も外側に至る点は外側楕円が最も内側に至る点よりも更に内側にある。	核種の沈殿が人工バリア内部にとどまり、その後環境条件が変化しないために、ここで溶解度限界が機能し続ける。

グループ2と4、及びグループ6と7の間には質的な差異はなく、最大核種放出率は、沈殿到達位置や再溶解時刻といった定量的な条件に依存して連続的に推移しているものと考えられる。また、グループ5では平均自体が他のシャドウモデルと質的に異なるものとなっており、SVDの効率が最も低い（第一低感度変換に沿った摂動でも明らかに他のグループ（グループ1）の振るまいが生じている）。これは、内側楕円のみが存在しているシャドウモデル（図5.3.3-8左下）で、外側楕円は内側楕円と同時期に存在しているにも係わらずゆるみ域の解析グリッド中央に到達していないためにその存在が無視されていることと関連するものと思われる。

上記の各グループに共通した特徴の分析結果に基づけば、特に、グループ3、グループ5及びグループ7に含まれる頻度分布の3つのピークは、それぞれ溶解度限界が機能せずガラス浸出率律速となっているケース、ゆるみ域において溶解度限界が働いているケース及び溶解度限界が機能しているケースとにそれぞれ対応するものと推定される。そこで、これらの単純なケースを設定して別途計算を実施した。結果として算出されたNp-237最大核種放出率（対数）は、それぞれ、約-4、-7及び-9.6であり各ピークにはほぼ正確に該当している。これは、上表の各グループの特徴付けを裏付けるものとなっている。

これまでの殆どの性能評価事例において、環境条件変化については、全域が酸化性である場合と全域が還元性である場合という両極端のみを考えるという設定が採られてきた。しかしながら、この様な手順により真に最大の影響を把握できるのは、モデルの応答が線形で単調な場合のみである。実際、今回の解析結果は、全域が酸化性等の極端な地球化学条件となり溶解度限界が機能しないという場合以上に高い核種放出率をもたらす得るシナ

リオが想定されることを物語っている。

感度解析手法という観点から言えば、SVDによるパターン認識は専門家の主観的な判断を介することなくグループの分類とその固有の特性を明確化し得るという意味で今後の研究において強力なツールとして活用できるものと考えられる。特に、種々のシャドウモデルを組み合わせることにより専門家が直接解釈することが困難なほど複雑となった入力に対する感度を解明する上では、この手法の重要性がますますものと考えられる。

#### 5.4 今後の研究に適用すべき感度解析手法の提案

前節までに述べた例題のうち、5.2については通常の回帰分析の手法が適用可能であったのに対して、5.3については回帰分析の手法は適用困難でありグループ分けとSVDによる各グループの特徴付けを行うことが効果的であった。これは、5.2の問題が全体として一つのほぼ共通なしかも絶対値あるいはランクのいずれかに於いて線形近似が成立するような共通の感度の傾向を有しているのに対し、5.3の感度の構造はより複雑であって全ケースが互いに全く傾向を異にする幾つかのグループによって構成されていることを意味していると考えられる。従って、本年度の経験に基づき、今後の研究における感度解析手法としては以下のような手順を踏むことが適当と考えられる。

- i) 統計的サンプリングに基づく多数回の計算の実施
- ii) 計算結果についてのクラスター分析による類別
- iii) 各クラスターについてのSVDによる共通性の確認と現象論的解釈
- iv) 自己同一性の確認されたクラスターに対する回帰分析

簡単に言えば、一般に複雑な幾何学的特徴を有する非線形核種移行問題の応答曲面（response surface）に対していきなり単一の平面による近似を行うのではなく、まず応答曲面をそれぞれ共通した特徴を持つ小領域に分割し、その後それぞれの小領域について回帰分析を施すというものである。

以上の手法を実用に供するにあたって、以下の諸点に注意を要する。

### 1) 体系的なクラスター分析手法の活用

今回の例題ではクラスターの構造が比較的簡単であったこと及び最大核種放出率という単一の性能尺度に着目していたことから簡単な図形的考察に基づきクラスターの分類を行った。しかしながら、将来の適用に当たっては状況がより複雑となりクラスターの分類が直ちに行えない状況も想定される。そこで、近年盛んに開発が進められている体系的なクラスター分析の手法を来年度以降の研究で積極的に採り入れていくことが必要と考えられる。また、この様な手法を用いるとともに性能尺度の数を増やす（例えば単一核種の最大放出率と複数核種のそれを併用すること、ピーク到達時間、等）ことによって今回の例題で見られた様に二つの異なるクラスターが混在してしまう状態を事前に避けることも可能になるものと考えられる。

### 2) i), ii), iii) の各ステップの反復的な実施

問題が複雑になりシャドウモデルのパラメータ数が増すにつれてi)のステップで全パラメータ空間を一様に十分な密度で覆うことは次第に難しくなるものと想定される。このような場合には、予めi), ii), iii)の各ステップを反復的に実施することを前提として1回目のi)のステップではまばらに全体を覆い、ここで得られた結果に対してii)及びiii)の過程でクラスター分類に見当をつけさらにこれを確認するためにパラメータ空間の中で焦点となる領域に重点をおいて2回目のi)のサンプリングと計算を実施するという進め方が有効に成る可能性がある。

### 3) 回帰分析の相対的な重要性

今回の5.3における例題がそうであった様に、responce surfaceの非線形性が増しクラスターの構造が小さく複雑になるにつれ個々のクラスター内での解析結果の変動幅は小さくなる。このため、各クラスターの内部の感度を回帰分析によって詳しく調べることの重要性は一般には必ずしも高くないものと考えられる。このような場合は、4. においても述べた様に、評価結果が安全側と不安全側の境界をまたぐ様なクラスターでありかつある程度の大きさを持つものについてのみ回帰分析を行うことが妥当と考えられる。

## 6. まとめ及び今後の課題

本年度の研究として、次のような項目を実施した。

1. SPADE上の1次元プロトタイプモデルを拡張し、複数崩壊系列の問題を扱えるようにすること
2. 従来の不確実性解析手法に対する文献調査を行い、これらの限界及び代替的な手法を用いた打開策を明らかにすること
3. 動的解析に適した体系的な感度解析の手法を明確化すること

各項目について得られた主要な成果は次の通りである。

1. prespf. file を用いてSPADEの問題を設定するという方法を採用することにより、任意メンバーの複数崩壊系列と複数の移行形態さらにはこれらの間の瞬時平衡あるいは速度論的な遷移を考慮した現象等の複雑な問題を効率的かつ体系的に設定することが可能となった。
2. 従来の不確実性解析手法の主な問題点は、
  - i) 設定されたケースの「尤らしさ」に対する主観的な判断に確率論を適用することの不適切さ（これは「リスク希釈」と呼ばれる効果をもたらす）
  - ii) 異なるシナリオや概念モデルを、数学的な枠組みのないまま離散的な対象として取り扱うことにある。これらに対しては、上記の動的解析の手法を確率論に代わるものとしてファジー理論と組み合わせることによって解決していく見込みがある。
3. 従来の感度解析手法は、動的解析を先導しあるいはまた結果を解釈するという目標を必ずしも常に満足し得るものではない。特に、この問題点はモデルの応答が非線形あるいは非単調である場合に顕著なものとなる。このような場合には、本研究で新たに開発したSVD (Singular Value Decomposition) によるパターン認識の手法を用いて影響の高いケース群の共通的な特徴を客観的に明らかにしていくことが有効である。

本年度の解析は手法の開発と適用性の確認を目的としたものであり、解析そのものは、個々のモデルの詳しさ及び網羅したシナリオ、モデル及びパラメータの変動可能性の大きさのいずれを見ても予備的な位置づけにあるものと言うことができる。この様な観点からは、今後の研究課題として以下の二つの方向性を追求していくことが重要と考えられる。

- ・ニアフィールド母岩の不均質性と時間的な変遷による影響を採り入れた多次元の核種移行解析手法の開発（詳しい解析）
- ・シナリオ、概念モデル及びパラメータの変動可能性と不確実性とを包含するシャドウモデル空間についての網羅的な不確実性解析の実施（幅広い解析）

一見するとこれら二つの方向性をかけ合わせると、全体として必要となる計算時間は無限に発散するようにも思える。しかしながら、「詳しい解析」の設定は物理的に不合理な条件の組み合わせを顕著なものとするにより不必要なケースを減少させ、逆に幅広い可能性についての解析により結果の幅をおさえるという方向性は極端に詳しい解析を不要とする、という様に相互に補完的な進め方も可能である。今後の研究開発に於いては、この様な「詳しさ」と「幅広さ」の最適な組み合わせを明確にすることが、第二次とりまとめに向けての成否の鍵を握るものと思われる。

## 参考文献

- Doctor, P. G., 1989, "Sensitivity and uncertainty analyses for performance assessment modeling", *Engineering Geology*, 26 (1989) 411-429
- Grindrod, P. 1991, "Patterns and Waves", Oxford University Press, Oxford
- Obloy, E. M., 1983, "GRESS Gradient Enhanced Software System Version B User's guide", Oak Ridge National Laboratory Report ORNL/TM-8339
- Ortoleva, P. J., 1994, "Geochemical Self-Organization", Oxford University Press, New York
- Savage, D. ed., 1995, "The Scientific and Regulatory Basis for the Geological Disposal of Radioactive Waste", John Wiley and Sons, Chichester
- 高瀬 博康、中安 昭夫、ニアフィールド現象の変遷に関する動的解析手法の開発 (II)、動力炉・核燃料開発事業団 委託研究内容報告書 PNC ZJ1281 95-006(1)  
1995年 2月
- Takase, H. and Grindrod, P., 1994, "Precipitation Kinetics of Radioactive Elements and Their Effect upon Redox Conditions of the Near Field", in *Proceedings of the fifth annual international conference of high-level radioactive waste management*, American Nuclear Society
- Takase, H. and Grindrod, P., 1996, "How can coupled systems evolve? A scenario simulation methodology", to appear in *Proceedings of the seventh annual international conference of high-level radioactive waste management*, American Nuclear Society
- Robinson, P. C. and Cooper, N. S., 1995, "Review on development of methodologies for modelling with uncertainty and variability: Munvar project", European Commission, Nuclear Science and Technology, EUR 16174 EN

## 付録一 1

.prespfファイル及び対応する.spfファイルの例

## 複数崩壊系列を考慮した人工バリア中核種移行問題の .prespfファイルの例



SPARSE;  
DEBUG;  
EPSSTEP 1.0e-4;  
LISTFILE;  
MINTIME 10.0^0.125;  
MAXTIME 1.0E8;  
GEOMSTEP 10.0^0.125;

DECAY CHAIN Plutonium.240 > Pu240lambda > Uranium.236 > U236lambda >  
Thorium.232 > Th232lambda > ;

DECAY CHAIN Americium.241 > Am241lambda > Neptunium.237 > Np237lambda >  
Uranium.233 > U233lambda > ;

DECAY CHAIN Uranium.238 > U238lambda > Uranium.234 > U234lambda >  
Thorium.230 > Th230lambda > ;

DECAY CHAIN Americium.243 > Am243lambda > Plutonium.239 > Pu239lambda >  
Uranium.235 > U235lambda > ;

CONSTANT Pu240lambda = (log(2)/6.58e3);  
CONSTANT U236lambda = (log(2)/2.39e7);  
CONSTANT Th232lambda = (log(2)/1.4e10);  
CONSTANT Am241lambda = (log(2)/4.58e2);  
CONSTANT Np237lambda = (log(2)/2.14e6);  
CONSTANT U233lambda = (log(2)/1.62e5);  
CONSTANT U238lambda = (log(2)/4.51e9);  
CONSTANT U234lambda = (log(2)/2.47e5);  
CONSTANT Th230lambda = (log(2)/8.00e4);  
CONSTANT Am243lambda = (log(2)/7.95e3);  
CONSTANT Pu239lambda = (log(2)/2.44e4);  
CONSTANT U235lambda = (log(2)/7.10e8);

CHEMICAL STATE dissolved ions;  
CHEMICAL STATE sorbed ions;  
CHEMICAL STATE precipitate;

COLLECTED STATE ions : dissolved ions, sorbed ions;  
COLLECTED STATE precipitates : precipitate;

LAYER wasteform : 1 : 0.0 : 0.2 : centre;  
LAYER overpack : 1 : 0.2 : 0.5 : centre;  
LAYER buffer : 10 : 0.5 : 1.5 : centre;  
LAYER decompressed zone : 1 : 1.5 : 3.0 : centre;

POROSITY wasteform,overpack,buffer : 0.33;  
POROSITY decompressed zone : 0.03;

CONSTANT KdAm = 10.0;  
CONSTANT KdPu = 10.0;  
CONSTANT KdNp = 0.1;  
CONSTANT KdTh = 0.1;  
CONSTANT KdU = 0.1;  
CONSTANT rho = 2.7E3;

VECTOR KAm[grid];  
VECTOR KPu[grid];  
VECTOR KNp[grid];  
VECTOR KTh[grid];  
VECTOR KU[grid];

SIDE KAm=1+(1-porosity)\*rho\*KdAm/porosity;  
SIDE KPu=1+(1-porosity)\*rho\*KdPu/porosity;  
SIDE KNp=1+(1-porosity)\*rho\*KdNp/porosity;  
SIDE KTh=1+(1-porosity)\*rho\*KdTh/porosity;  
SIDE KU=1+(1-porosity)\*rho\*KdU/porosity;

STATE DEPENDENCE Americium.243 : dissolved ions :  $x/K_{Am}, x=[\text{Americium.243, ions}]$ ;  
STATE DEPENDENCE Americium.243 : sorbed ions :  $(K_{Am}-1)*x/K_{Am}, x=[\text{Americium.243, ions}]$ ;  
STATE DEPENDENCE Americium.241 : dissolved ions :  $x/K_{Am}, x=[\text{Americium.241, ions}]$ ;  
STATE DEPENDENCE Americium.241 : sorbed ions :  $(K_{Am}-1)*x/K_{Am}, x=[\text{Americium.241, ions}]$ ;  
  
STATE DEPENDENCE Plutonium.240 : dissolved ions :  $x/K_{Pu}, x=[\text{Plutonium.240, ions}]$ ;  
STATE DEPENDENCE Plutonium.240 : sorbed ions :  $(K_{Pu}-1)*x/K_{Pu}, x=[\text{Plutonium.240, ions}]$ ;  
STATE DEPENDENCE Plutonium.239 : dissolved ions :  $x/K_{Pu}, x=[\text{Plutonium.239, ions}]$ ;  
STATE DEPENDENCE Plutonium.239 : sorbed ions :  $(K_{Pu}-1)*x/K_{Pu}, x=[\text{Plutonium.239, ions}]$ ;  
  
STATE DEPENDENCE Neptunium.237 : dissolved ions :  $x/K_{Np}, x=[\text{Neptunium.237, ions}]$ ;  
STATE DEPENDENCE Neptunium.237 : sorbed ions :  $(K_{Np}-1)*x/K_{Np}, x=[\text{Neptunium.237, ions}]$ ;  
  
STATE DEPENDENCE Thorium.232 : dissolved ions :  $x/K_{Th}, x=[\text{Thorium.232, ions}]$ ;  
STATE DEPENDENCE Thorium.232 : sorbed ions :  $(K_{Th}-1)*x/K_{Th}, x=[\text{Thorium.232, ions}]$ ;  
STATE DEPENDENCE Thorium.230 : dissolved ions :  $x/K_{Th}, x=[\text{Thorium.230, ions}]$ ;  
STATE DEPENDENCE Thorium.230 : sorbed ions :  $(K_{Th}-1)*x/K_{Th}, x=[\text{Thorium.230, ions}]$ ;  
  
STATE DEPENDENCE Uranium.238 : dissolved ions :  $x/K_U, x=[\text{Uranium.238, ions}]$ ;  
STATE DEPENDENCE Uranium.238 : sorbed ions :  $(K_U-1)*x/K_U, x=[\text{Uranium.238, ions}]$ ;  
STATE DEPENDENCE Uranium.236 : dissolved ions :  $x/K_U, x=[\text{Uranium.236, ions}]$ ;  
STATE DEPENDENCE Uranium.236 : sorbed ions :  $(K_U-1)*x/K_U, x=[\text{Uranium.236, ions}]$ ;  
STATE DEPENDENCE Uranium.235 : dissolved ions :  $x/K_U, x=[\text{Uranium.235, ions}]$ ;  
STATE DEPENDENCE Uranium.235 : sorbed ions :  $(K_U-1)*x/K_U, x=[\text{Uranium.235, ions}]$ ;  
STATE DEPENDENCE Uranium.234 : dissolved ions :  $x/K_U, x=[\text{Uranium.234, ions}]$ ;  
STATE DEPENDENCE Uranium.234 : sorbed ions :  $(K_U-1)*x/K_U, x=[\text{Uranium.234, ions}]$ ;  
STATE DEPENDENCE Uranium.233 : dissolved ions :  $x/K_U, x=[\text{Uranium.233, ions}]$ ;  
STATE DEPENDENCE Uranium.233 : sorbed ions :  $(K_U-1)*x/K_U, x=[\text{Uranium.233, ions}]$ ;

AVERAGE MOBILITY Americium : ions : wasteform, overpack, buffer, decompressed zone :  
 $2.84E-2/K_{Am}$  ;  
AVERAGE MOBILITY Plutonium : ions : wasteform, overpack, buffer, decompressed zone :  
 $2.84E-2/K_{Pu}$  ;  
AVERAGE MOBILITY Neptunium : ions : wasteform, overpack, buffer, decompressed zone :  
 $2.84E-2/K_{Np}$  ;  
AVERAGE MOBILITY Thorium : ions : wasteform, overpack, buffer, decompressed zone :  
 $2.84E-2/K_{Th}$  ;  
AVERAGE MOBILITY Uranium : ions : wasteform, overpack, buffer, decompressed zone :  
 $2.84E-2/K_U$  ;

ADVECTIVE MOBILITY Americium : ions : decompressed zone :  
 $1.0/(K_{Am}*\text{length})$  ;  
ADVECTIVE MOBILITY Plutonium : ions : decompressed zone :  
 $1.0/(K_{Pu}*\text{length})$  ;  
ADVECTIVE MOBILITY Neptunium : ions : decompressed zone :  
 $1.0/(K_{Np}*\text{length})$  ;  
ADVECTIVE MOBILITY Thorium : ions : decompressed zone :  
 $1.0/(K_{Th}*\text{length})$  ;  
ADVECTIVE MOBILITY Uranium : ions : decompressed zone :  
 $1.0/(K_U*\text{length})$  ;

SOURCE Americium : ions : decompressed zone : GROUNDWATER;  
SOURCE Plutonium : ions : decompressed zone : GROUNDWATER;  
SOURCE Neptunium : ions : decompressed zone : GROUNDWATER;  
SOURCE Thorium : ions : decompressed zone : GROUNDWATER;  
SOURCE Uranium : ions : decompressed zone : GROUNDWATER;

SOURCE Plutonium.240 : ions : wasteform :

$\text{leach}*\exp(-\text{leach}*t)*x_1*\exp(-l_1*t)$ ,  
 $t=\text{TIME}, x_1=\text{CPu240initial}, l_1=\text{Pu240lambda}$ ;

SOURCE Uranium.236 : ions : wasteform :

$\text{leach}*\exp(-\text{leach}*t)*(x_2*\exp(-l_2*t)+l_1*x_1*(\exp(-l_1*t)-\exp(-l_2*t))/(l_2-l_1))$ ,  
 $t=\text{TIME}, x_1=\text{CPu240initial}, l_1=\text{Pu240lambda}, x_2=\text{CU236initial}, l_2=\text{U236lambda}$ ;

SOURCE Thorium.232 : ions : wasteform :

$\text{leach}*\exp(-\text{leach}*t)*(x_3*\exp(-l_3*t)+l_2*x_2*(\exp(-l_2*t)-\exp(-l_3*t))/(l_3-l_2)+$   
 $x_1*l_1*l_2*((\exp(-l_1*t)-\exp(-l_3*t))/(l_3-l_1)-(\exp(-l_2*t)-\exp(-l_3*t))/(l_3-l_2))/(l_2-l_1))$ ,  
 $t=\text{TIME}, x_1=\text{CPu240initial}, l_1=\text{Pu240lambda}, x_2=\text{CU236initial}, l_2=\text{U236lambda}$ ,

x3=CTh232initial,l3=Th232lambda;

SOURCE Americium.243 : ions : wasteform :

leach\*exp(-leach\*t)\*x1\*exp(-l1\*t),  
t=TIME,x1=CAM243initial,l1=Am243lambda;

SOURCE Plutonium.239 : ions : wasteform :

leach\*exp(-leach\*t)\*(x2\*exp(-l2\*t)+l1\*x1\*(exp(-l1\*t)-exp(-l2\*t))/(l2-l1)),  
t=TIME,x1=CAM243initial,l1=Am243lambda,x2=CPu239initial,l2=Pu239lambda;

SOURCE Uranium.235 : ions : wasteform :

leach\*exp(-leach\*t)\*(x3\*exp(-l3\*t)+l2\*x2\*(exp(-l2\*t)-exp(-l3\*t))/(l3-l2)+  
x1\*l1\*l2\*((exp(-l1\*t)-exp(-l3\*t))/(l3-l1)-(exp(-l2\*t)-exp(-l3\*t))/(l3-l2))/(l2-l1)),  
t=TIME,x1=CAM243initial,l1=Am243lambda,x2=CPu239initial,l2=Pu239lambda,  
x3=CU235initial,l3=U235lambda;

SOURCE Americium.241 : ions : wasteform :

leach\*exp(-leach\*t)\*x1\*exp(-l1\*t),  
t=TIME,x1=CAM241initial,l1=Am241lambda;

SOURCE Neptunium.237 : ions : wasteform :

leach\*exp(-leach\*t)\*(x2\*exp(-l2\*t)+l1\*x1\*(exp(-l1\*t)-exp(-l2\*t))/(l2-l1)),  
t=TIME,x1=CAM241initial,l1=Am241lambda,x2=CNp237initial,l2=Np237lambda;

SOURCE Uranium.233 : ions : wasteform :

leach\*exp(-leach\*t)\*(x3\*exp(-l3\*t)+l2\*x2\*(exp(-l2\*t)-exp(-l3\*t))/(l3-l2)+  
x1\*l1\*l2\*((exp(-l1\*t)-exp(-l3\*t))/(l3-l1)-(exp(-l2\*t)-exp(-l3\*t))/(l3-l2))/(l2-l1)),  
t=TIME,x1=CAM241initial,l1=Am241lambda,x2=CNp237initial,l2=Np237lambda,  
x3=CU233initial,l3=U233lambda;

SOURCE Uranium.238 : ions : wasteform :

leach\*exp(-leach\*t)\*x1\*exp(-l1\*t),  
t=TIME,x1=CU238initial,l1=U238lambda;

SOURCE Uranium.234 : ions : wasteform :

leach\*exp(-leach\*t)\*(x2\*exp(-l2\*t)+l1\*x1\*(exp(-l1\*t)-exp(-l2\*t))/(l2-l1)),  
t=TIME,x1=CU238initial,l1=U238lambda,x2=CU234initial,l2=U234lambda;

SOURCE Thorium.230 : ions : wasteform :

leach\*exp(-leach\*t)\*(x3\*exp(-l3\*t)+l2\*x2\*(exp(-l2\*t)-exp(-l3\*t))/(l3-l2)+  
x1\*l1\*l2\*((exp(-l1\*t)-exp(-l3\*t))/(l3-l1)-(exp(-l2\*t)-exp(-l3\*t))/(l3-l2))/(l2-l1)),  
t=TIME,x1=CU238initial,l1=U238lambda,x2=CU234initial,l2=U234lambda,  
x3=CTh230initial,l3=Th230lambda;

CONSTANT leach = 1.0e-4;

CONSTANT length = 1.95;

\*CONSTANT length = 1.00;

CONSTANT CAM243initial = 0.358/length;

CONSTANT CAM241initial = 0.230/length;

CONSTANT CPu240initial = 0.157/length;

CONSTANT CPu239initial = 0.223/length;

CONSTANT CNp237initial = 3.527/length;

CONSTANT CTh232initial = 5.388e-6/length;

CONSTANT CTh230initial = 2.37e-5/length;

CONSTANT CU238initial = 8.15/length;

CONSTANT CU236initial = 0.0547/length;

CONSTANT CU235initial = 0.0885/length;

CONSTANT CU234initial = 1.00e-3/length;

CONSTANT CU233initial = 1.06e-3/length;

REACTION Americium.243 : ions : precipitates :

-MuAm\*(y-CAM)\*hsmooth(10\*(hsmooth((y-CAM),CAM\*1e-1)\*  
hsmooth(x,CAM\*1e-1)+(1.0-hsmooth((y-CAM),CAM\*1e-1))\*hsmooth(w,CAM\*1e-1)),0.1),  
x=[Americium.243,dissolved ions],y=[Americium,dissolved ions],  
w=[Americium.243,precipitates];

REACTION Americium.241 : ions : precipitates :

-MuAm\*(y-CAM)\*hsmooth(10\*(hsmooth((y-CAM),CAM\*1e-1)\*  
hsmooth(x,CAM\*1e-1)+(1.0-hsmooth((y-CAM),CAM\*1e-1))\*hsmooth(w,CAM\*1e-1)),0.1),  
x=[Americium.241,dissolved ions],y=[Americium,dissolved ions],  
w=[Americium.241,precipitates];

CONSTANT MuAm = 0.1;  
CONSTANT CAM = 6.3e-5;

REACTION Plutonium.240 : ions : precipitates :  
-MuPu\*(y-CPu)\*hsmooth(10\*(hsmooth((y-CPu),CPu\*1e-1))\*  
hsmooth(x,CPu\*1e-1)+(1.0-hsmooth((y-CPu),CPu\*1e-1))\*hsmooth(w,CPu\*1e-1)),0.1),  
x=[Plutonium.240,dissolved ions],y=[Plutonium,dissolved ions],  
w=[Plutonium.240,precipitates];

REACTION Plutonium.239 : ions : precipitates :  
-MuPu\*(y-CPu)\*hsmooth(10\*(hsmooth((y-CPu),CPu\*1e-1))\*  
hsmooth(x,CPu\*1e-1)+(1.0-hsmooth((y-CPu),CPu\*1e-1))\*hsmooth(w,CPu\*1e-1)),0.1),  
x=[Plutonium.239,dissolved ions],y=[Plutonium,dissolved ions],  
w=[Plutonium.239,precipitates];

CONSTANT MuPu = 0.1;  
CONSTANT CPu = 2.5e-8;

REACTION Neptunium.237 : ions : precipitates :  
-MuNp\*(y-CNp)\*hsmooth(10\*(hsmooth((y-CNp),CNp\*1e-1))\*  
hsmooth(x,CNp\*1e-1)+(1.0-hsmooth((y-CNp),CNp\*1e-1))\*hsmooth(w,CNp\*1e-1)),0.1),  
x=[Neptunium.237,dissolved ions],y=[Neptunium,dissolved ions],  
w=[Neptunium.237,precipitates];

CONSTANT MuNp = 0.1;  
CONSTANT CNp = 2.0e-9;

REACTION Thorium.232 : ions : precipitates :  
-MuTh\*(y-CTh)\*hsmooth(10\*(hsmooth((y-CTh),CTh\*1e-1))\*  
hsmooth(x,CTh\*1e-1)+(1.0-hsmooth((y-CTh),CTh\*1e-1))\*hsmooth(w,CTh\*1e-1)),0.1),  
x=[Thorium.232,dissolved ions],y=[Thorium,dissolved ions],  
w=[Thorium.232,precipitates];

REACTION Thorium.230 : ions : precipitates :  
-MuTh\*(y-CTh)\*hsmooth(10\*(hsmooth((y-CTh),CTh\*1e-1))\*  
hsmooth(x,CTh\*1e-1)+(1.0-hsmooth((y-CTh),CTh\*1e-1))\*hsmooth(w,CTh\*1e-1)),0.1),  
x=[Thorium.230,dissolved ions],y=[Thorium,dissolved ions],  
w=[Thorium.230,precipitates];

CONSTANT MuTh = 0.1;  
CONSTANT CTh = 2.5e-7;

REACTION Uranium.238 : ions : precipitates :  
-MuU\*(y-CU)\*hsmooth(10\*(hsmooth((y-CU),CU\*1e-1))\*  
hsmooth(x,CU\*1e-1)+(1.0-hsmooth((y-CU),CU\*1e-1))\*hsmooth(w,CU\*1e-1)),0.1),  
x=[Uranium.238,dissolved ions],y=[Uranium,dissolved ions],  
w=[Uranium.238,precipitates];

REACTION Uranium.236 : ions : precipitates :  
-MuU\*(y-CU)\*hsmooth(10\*(hsmooth((y-CU),CU\*1e-1))\*  
hsmooth(x,CU\*1e-1)+(1.0-hsmooth((y-CU),CU\*1e-1))\*hsmooth(w,CU\*1e-1)),0.1),  
x=[Uranium.236,dissolved ions],y=[Uranium,dissolved ions],  
w=[Uranium.236,precipitates];

REACTION Uranium.235 : ions : precipitates :  
-MuU\*(y-CU)\*hsmooth(10\*(hsmooth((y-CU),CU\*1e-1))\*  
hsmooth(x,CU\*1e-1)+(1.0-hsmooth((y-CU),CU\*1e-1))\*hsmooth(w,CU\*1e-1)),0.1),  
x=[Uranium.235,dissolved ions],y=[Uranium,dissolved ions],  
w=[Uranium.235,precipitates];

REACTION Uranium.234 : ions : precipitates :  
-MuU\*(y-CU)\*hsmooth(10\*(hsmooth((y-CU),CU\*1e-1))\*  
hsmooth(x,CU\*1e-1)+(1.0-hsmooth((y-CU),CU\*1e-1))\*hsmooth(w,CU\*1e-1)),0.1),  
x=[Uranium.234,dissolved ions],y=[Uranium,dissolved ions],  
w=[Uranium.234,precipitates];

REACTION Uranium.233 : ions : precipitates :

```
-MuU*(y-CU)*hsmooth(10*(hsmooth((y-CU),CU*1e-1)*  
hsmooth(x,CU*1e-1)+(1.0-hsmooth((y-CU),CU*1e-1))*hsmooth(w,CU*1e-1)),0.1),  
x=[Uranium.233,dissolved ions],y=[Uranium,dissolved ions],  
w=[Uranium.233,precipitates];  
  
CONSTANT MuU = 0.1;  
CONSTANT CU = 3.9e-7;  
  
SPFWEIGHT Americium.243 : ions : 1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Americium.243,ions];  
SPFWEIGHT Americium.243 : precipitates :  
1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Americium.243,precipitates];  
SPFWEIGHT Americium.241 : ions : 1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Americium.241,ions];  
SPFWEIGHT Americium.241 : precipitates :  
1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Americium.241,precipitates];  
  
SPFWEIGHT Plutonium.240 : ions : 1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Plutonium.240,ions];  
SPFWEIGHT Plutonium.240 : precipitates :  
1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Plutonium.240,precipitates];  
SPFWEIGHT Plutonium.239 : ions : 1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Plutonium.239,ions];  
SPFWEIGHT Plutonium.239 : precipitates :  
1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Plutonium.239,precipitates];  
  
SPFWEIGHT Neptunium.237 : ions : 1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Neptunium.237,ions];  
SPFWEIGHT Neptunium.237 : precipitates :  
1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Neptunium.237,precipitates];  
  
SPFWEIGHT Thorium.232 : ions : 1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Thorium.232,ions];  
SPFWEIGHT Thorium.232 : precipitates :  
1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Thorium.232,precipitates];  
SPFWEIGHT Thorium.230 : ions : 1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Thorium.230,ions];  
SPFWEIGHT Thorium.230 : precipitates :  
1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Thorium.230,precipitates];  
  
SPFWEIGHT Uranium.238 : ions : 1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Uranium.238,ions];  
SPFWEIGHT Uranium.238 : precipitates :  
1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Uranium.238,precipitates];  
SPFWEIGHT Uranium.236 : ions : 1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Uranium.236,ions];  
SPFWEIGHT Uranium.236 : precipitates :  
1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Uranium.236,precipitates];  
SPFWEIGHT Uranium.235 : ions : 1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Uranium.235,ions];  
SPFWEIGHT Uranium.235 : precipitates :  
1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Uranium.235,precipitates];  
SPFWEIGHT Uranium.234 : ions : 1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Uranium.234,ions];  
SPFWEIGHT Uranium.234 : precipitates :  
1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Uranium.234,precipitates];  
SPFWEIGHT Uranium.233 : ions : 1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Uranium.233,ions];  
SPFWEIGHT Uranium.233 : precipitates :  
1.0/(abs(x)+1.e-8),x=m[Uranium.233,precipitates];
```

## 複数崩壊系列を考慮した人工バリア中核種移行問題の .spfファイルの例

\*  
\* SPADE file test.spf automatically generated  
\* from the file test.prespf by user sje  
\* Created on machine soggy, full address "soggy"  
\* Date : Mon Jan 8 13:12:33 1996  
\*

DEBUG;  
LISTFILE;  
SPARSE;  
EPSSTEP 1.0e-4;

MINTIME 10.0^0.125;  
MAXTIME 1.0E8;  
GEOMSTEP 10.0^0.125;

\* Automatically created SPATIAL and REGION

SPATIAL k,UNIFORM,0,12,13;  
REGION grid,CART1D,k;

\* Automatically defined VECTOR

\* define the vector for position of each cell

VECTOR cell[grid];

\* define the vector for Area between cells

VECTOR area[grid];

\* define the vector for volume of each cell

VECTOR volume[grid];

\* define the vector for porosity of cells

VECTOR porosity[grid];

\* define the vector for the mass of isotope i in collected state j

VECTOR m\_1\_1[grid];  
VECTOR m\_1\_2[grid];  
VECTOR m\_2\_1[grid];  
VECTOR m\_2\_2[grid];  
VECTOR m\_3\_1[grid];  
VECTOR m\_3\_2[grid];  
VECTOR m\_4\_1[grid];  
VECTOR m\_4\_2[grid];  
VECTOR m\_5\_1[grid];  
VECTOR m\_5\_2[grid];  
VECTOR m\_6\_1[grid];  
VECTOR m\_6\_2[grid];  
VECTOR m\_7\_1[grid];  
VECTOR m\_7\_2[grid];  
VECTOR m\_8\_1[grid];  
VECTOR m\_8\_2[grid];  
VECTOR m\_9\_1[grid];  
VECTOR m\_9\_2[grid];  
VECTOR m\_10\_1[grid];  
VECTOR m\_10\_2[grid];  
VECTOR m\_11\_1[grid];  
VECTOR m\_11\_2[grid];  
VECTOR m\_12\_1[grid];  
VECTOR m\_12\_2[grid];

\* define the vector for the concentration of isotope i in collected state j

```
VECTOR c_1_1[grid];  
VECTOR c_1_2[grid];  
VECTOR c_2_1[grid];  
VECTOR c_2_2[grid];  
VECTOR c_3_1[grid];  
VECTOR c_3_2[grid];  
VECTOR c_4_1[grid];  
VECTOR c_4_2[grid];  
VECTOR c_5_1[grid];  
VECTOR c_5_2[grid];  
VECTOR c_6_1[grid];  
VECTOR c_6_2[grid];  
VECTOR c_7_1[grid];  
VECTOR c_7_2[grid];  
VECTOR c_8_1[grid];  
VECTOR c_8_2[grid];  
VECTOR c_9_1[grid];  
VECTOR c_9_2[grid];  
VECTOR c_10_1[grid];  
VECTOR c_10_2[grid];  
VECTOR c_11_1[grid];  
VECTOR c_11_2[grid];  
VECTOR c_12_1[grid];  
VECTOR c_12_2[grid];
```

\* define the vector for the mass of element 1 in collected state j

```
VECTOR M_1_1[grid];  
VECTOR M_1_2[grid];  
VECTOR M_2_1[grid];  
VECTOR M_2_2[grid];  
VECTOR M_3_1[grid];  
VECTOR M_3_2[grid];  
VECTOR M_4_1[grid];  
VECTOR M_4_2[grid];  
VECTOR M_5_1[grid];  
VECTOR M_5_2[grid];
```

\* define the vector for the concentration of element 1 in collected state j

```
VECTOR C_1_1[grid];  
VECTOR C_1_2[grid];  
VECTOR C_2_1[grid];  
VECTOR C_2_2[grid];  
VECTOR C_3_1[grid];  
VECTOR C_3_2[grid];  
VECTOR C_4_1[grid];  
VECTOR C_4_2[grid];  
VECTOR C_5_1[grid];  
VECTOR C_5_2[grid];
```

\* User defined VECTOR

```
VECTOR KAm[grid];  
VECTOR KPu[grid];  
VECTOR KNp[grid];  
VECTOR KTh[grid];  
VECTOR KU[grid];
```

\* define the vector for the mass of isotope i in chemical state j  
\* if variable required

```
VECTOR s_1_1[grid];  
VECTOR s_1_2[grid];  
VECTOR s_2_1[grid];  
VECTOR s_2_2[grid];
```



```
VECTOR s_3_1[grid];  
VECTOR s_3_2[grid];  
VECTOR s_4_1[grid];  
VECTOR s_4_2[grid];  
VECTOR s_5_1[grid];  
VECTOR s_5_2[grid];  
VECTOR s_6_1[grid];  
VECTOR s_6_2[grid];  
VECTOR s_7_1[grid];  
VECTOR s_7_2[grid];  
VECTOR s_8_1[grid];  
VECTOR s_8_2[grid];  
VECTOR s_9_1[grid];  
VECTOR s_9_2[grid];  
VECTOR s_10_1[grid];  
VECTOR s_10_2[grid];  
VECTOR s_11_1[grid];  
VECTOR s_11_2[grid];  
VECTOR s_12_1[grid];  
VECTOR s_12_2[grid];
```

\* define the vector for the concentration of isotope i in chemical state j  
\* if variable required

```
VECTOR n_1_1[grid];  
VECTOR n_1_2[grid];  
VECTOR n_2_1[grid];  
VECTOR n_2_2[grid];  
VECTOR n_3_1[grid];  
VECTOR n_3_2[grid];  
VECTOR n_4_1[grid];  
VECTOR n_4_2[grid];  
VECTOR n_5_1[grid];  
VECTOR n_5_2[grid];  
VECTOR n_6_1[grid];  
VECTOR n_6_2[grid];  
VECTOR n_7_1[grid];  
VECTOR n_7_2[grid];  
VECTOR n_8_1[grid];  
VECTOR n_8_2[grid];  
VECTOR n_9_1[grid];  
VECTOR n_9_2[grid];  
VECTOR n_10_1[grid];  
VECTOR n_10_2[grid];  
VECTOR n_11_1[grid];  
VECTOR n_11_2[grid];  
VECTOR n_12_1[grid];  
VECTOR n_12_2[grid];
```

\* define the vector for the mass of element 1 in chemical state j  
\* if variable required

```
VECTOR S_1_1[grid];  
VECTOR S_1_2[grid];  
VECTOR S_2_1[grid];  
VECTOR S_2_2[grid];  
VECTOR S_3_1[grid];  
VECTOR S_3_2[grid];  
VECTOR S_4_1[grid];  
VECTOR S_4_2[grid];  
VECTOR S_5_1[grid];  
VECTOR S_5_2[grid];
```

\* define the vector for the concentration of element 1 in chemical state j  
\* if variable required

```
VECTOR N_1_1[grid];
```

付-1(178)

```
VECTOR N_1_2[grid];  
VECTOR N_2_1[grid];  
VECTOR N_2_2[grid];  
VECTOR N_3_1[grid];  
VECTOR N_3_2[grid];  
VECTOR N_4_1[grid];  
VECTOR N_4_2[grid];  
VECTOR N_5_1[grid];  
VECTOR N_5_2[grid];
```

\* define the vector for average mobility of cells

```
VECTOR alpha_1_1[grid];  
VECTOR alpha_1_2[grid];  
VECTOR alpha_2_1[grid];  
VECTOR alpha_2_2[grid];  
VECTOR alpha_3_1[grid];  
VECTOR alpha_3_2[grid];  
VECTOR alpha_4_1[grid];  
VECTOR alpha_4_2[grid];  
VECTOR alpha_5_1[grid];  
VECTOR alpha_5_2[grid];  
VECTOR alpha_6_1[grid];  
VECTOR alpha_6_2[grid];  
VECTOR alpha_7_1[grid];  
VECTOR alpha_7_2[grid];  
VECTOR alpha_8_1[grid];  
VECTOR alpha_8_2[grid];  
VECTOR alpha_9_1[grid];  
VECTOR alpha_9_2[grid];  
VECTOR alpha_10_1[grid];  
VECTOR alpha_10_2[grid];  
VECTOR alpha_11_1[grid];  
VECTOR alpha_11_2[grid];  
VECTOR alpha_12_1[grid];  
VECTOR alpha_12_2[grid];
```

\* define the vector for the flux tensor

```
VECTOR Flux_1_1[grid];  
VECTOR Flux_1_2[grid];  
VECTOR Flux_2_1[grid];  
VECTOR Flux_2_2[grid];  
VECTOR Flux_3_1[grid];  
VECTOR Flux_3_2[grid];  
VECTOR Flux_4_1[grid];  
VECTOR Flux_4_2[grid];  
VECTOR Flux_5_1[grid];  
VECTOR Flux_5_2[grid];  
VECTOR Flux_6_1[grid];  
VECTOR Flux_6_2[grid];  
VECTOR Flux_7_1[grid];  
VECTOR Flux_7_2[grid];  
VECTOR Flux_8_1[grid];  
VECTOR Flux_8_2[grid];  
VECTOR Flux_9_1[grid];  
VECTOR Flux_9_2[grid];  
VECTOR Flux_10_1[grid];  
VECTOR Flux_10_2[grid];  
VECTOR Flux_11_1[grid];  
VECTOR Flux_11_2[grid];  
VECTOR Flux_12_1[grid];  
VECTOR Flux_12_2[grid];
```

\* define the vector for the transport tensor

```
VECTOR T_1_1[grid];
```

付-1(179)

```
VECTOR T_1_2[grid];  
VECTOR T_2_1[grid];  
VECTOR T_2_2[grid];  
VECTOR T_3_1[grid];  
VECTOR T_3_2[grid];  
VECTOR T_4_1[grid];  
VECTOR T_4_2[grid];  
VECTOR T_5_1[grid];  
VECTOR T_5_2[grid];  
VECTOR T_6_1[grid];  
VECTOR T_6_2[grid];  
VECTOR T_7_1[grid];  
VECTOR T_7_2[grid];  
VECTOR T_8_1[grid];  
VECTOR T_8_2[grid];  
VECTOR T_9_1[grid];  
VECTOR T_9_2[grid];  
VECTOR T_10_1[grid];  
VECTOR T_10_2[grid];  
VECTOR T_11_1[grid];  
VECTOR T_11_2[grid];  
VECTOR T_12_1[grid];  
VECTOR T_12_2[grid];
```

\* define the vector for source tensor

```
VECTOR J_1_1[grid];  
VECTOR J_1_2[grid];  
VECTOR J_2_1[grid];  
VECTOR J_2_2[grid];  
VECTOR J_3_1[grid];  
VECTOR J_3_2[grid];  
VECTOR J_4_1[grid];  
VECTOR J_4_2[grid];  
VECTOR J_5_1[grid];  
VECTOR J_5_2[grid];  
VECTOR J_6_1[grid];  
VECTOR J_6_2[grid];  
VECTOR J_7_1[grid];  
VECTOR J_7_2[grid];  
VECTOR J_8_1[grid];  
VECTOR J_8_2[grid];  
VECTOR J_9_1[grid];  
VECTOR J_9_2[grid];  
VECTOR J_10_1[grid];  
VECTOR J_10_2[grid];  
VECTOR J_11_1[grid];  
VECTOR J_11_2[grid];  
VECTOR J_12_1[grid];  
VECTOR J_12_2[grid];
```

\* define the vector for outflow tensor

```
VECTOR outflow_1[grid];  
VECTOR outflow_2[grid];  
VECTOR outflow_3[grid];  
VECTOR outflow_4[grid];  
VECTOR outflow_5[grid];  
VECTOR outflow_6[grid];  
VECTOR outflow_7[grid];  
VECTOR outflow_8[grid];  
VECTOR outflow_9[grid];  
VECTOR outflow_10[grid];  
VECTOR outflow_11[grid];  
VECTOR outflow_12[grid];
```

\* define the vector for the reaction tensor

```
VECTOR R_1_1[grid];  
VECTOR R_1_2[grid];  
VECTOR R_2_1[grid];  
VECTOR R_2_2[grid];  
VECTOR R_3_1[grid];  
VECTOR R_3_2[grid];  
VECTOR R_4_1[grid];  
VECTOR R_4_2[grid];  
VECTOR R_5_1[grid];  
VECTOR R_5_2[grid];  
VECTOR R_6_1[grid];  
VECTOR R_6_2[grid];  
VECTOR R_7_1[grid];  
VECTOR R_7_2[grid];  
VECTOR R_8_1[grid];  
VECTOR R_8_2[grid];  
VECTOR R_9_1[grid];  
VECTOR R_9_2[grid];  
VECTOR R_10_1[grid];  
VECTOR R_10_2[grid];  
VECTOR R_11_1[grid];  
VECTOR R_11_2[grid];  
VECTOR R_12_1[grid];  
VECTOR R_12_2[grid];
```

\* User defined CONSTANT variables

```
CONSTANT Pu240lambda = (log(2)/6.58e3);  
CONSTANT U236lambda = (log(2)/2.39e7);  
CONSTANT Th232lambda = (log(2)/1.4e10);  
CONSTANT Am241lambda = (log(2)/4.58e2);  
CONSTANT Np237lambda = (log(2)/2.14e6);  
CONSTANT U233lambda = (log(2)/1.62e5);  
CONSTANT U238lambda = (log(2)/4.51e9);  
CONSTANT U234lambda = (log(2)/2.47e5);  
CONSTANT Th230lambda = (log(2)/8.00e4);  
CONSTANT Am243lambda = (log(2)/7.95e3);  
CONSTANT Pu239lambda = (log(2)/2.44e4);  
CONSTANT U235lambda = (log(2)/7.10e8);  
CONSTANT KdAm = 10.0;  
CONSTANT KdPu = 10.0;  
CONSTANT KdNp = 0.1;  
CONSTANT KdTh = 0.1;  
CONSTANT KdU = 0.1;  
CONSTANT rho = 2.7E3;  
CONSTANT leach = 1.0e-4;  
CONSTANT length = 1.95;  
CONSTANT CAm243initial = 0.358/length;  
CONSTANT CAm241initial = 0.230/length;  
CONSTANT CPu240initial = 0.157/length;  
CONSTANT CPu239initial = 0.223/length;  
CONSTANT CNp237initial = 3.527/length;  
CONSTANT CTh232initial = 5.388e-6/length;  
CONSTANT CTh230initial = 2.37e-5/length;  
CONSTANT CU238initial = 8.15/length;  
CONSTANT CU236initial = 0.0547/length;  
CONSTANT CU235initial = 0.0885/length;  
CONSTANT CU234initial = 1.00e-3/length;  
CONSTANT CU233initial = 1.06e-3/length;  
CONSTANT MuAm = 0.1;  
CONSTANT CAm = 6.3e-5;  
CONSTANT MuPu = 0.1;  
CONSTANT CPu = 2.5e-8;  
CONSTANT MuNp = 0.1;  
CONSTANT CNp = 2.0e-9;
```

付-1(181)

```
CONSTANT MuTh = 0.1;  
CONSTANT CTh = 2.5e-7;  
CONSTANT MuU = 0.1;  
CONSTANT CU = 3.9e-7;
```

\* User defined SIDE variables

```
SIDE KAm=1+(1-porosity)*rho*KdAm/porosity;  
SIDE KPu=1+(1-porosity)*rho*KdPu/porosity;  
SIDE KNp=1+(1-porosity)*rho*KdNp/porosity;  
SIDE KTh=1+(1-porosity)*rho*KdTh/porosity;  
SIDE KU=1+(1-porosity)*rho*KdU/porosity;
```

\*Automatically created variables

\* Give the position of each cell reference point

```
CONSTANT cell[k=0]=1.000000e-01;  
CONSTANT cell[k=1]=3.500000e-01;  
CONSTANT cell[k=2]=5.500000e-01;  
CONSTANT cell[k=3]=6.500000e-01;  
CONSTANT cell[k=4]=7.500000e-01;  
CONSTANT cell[k=5]=8.500000e-01;  
CONSTANT cell[k=6]=9.500000e-01;  
CONSTANT cell[k=7]=1.050000e+00;  
CONSTANT cell[k=8]=1.150000e+00;  
CONSTANT cell[k=9]=1.250000e+00;  
CONSTANT cell[k=10]=1.350000e+00;  
CONSTANT cell[k=11]=1.450000e+00;  
CONSTANT cell[k=12]=2.250000e+00;
```

\* Give the area of each cell's upper boundary

```
CONSTANT area[k=0]=1.256637e+00;  
CONSTANT area[k=1]=3.141593e+00;  
CONSTANT area[k=2]=3.769911e+00;  
CONSTANT area[k=3]=4.398230e+00;  
CONSTANT area[k=4]=5.026548e+00;  
CONSTANT area[k=5]=5.654867e+00;  
CONSTANT area[k=6]=6.283185e+00;  
CONSTANT area[k=7]=6.911504e+00;  
CONSTANT area[k=8]=7.539822e+00;  
CONSTANT area[k=9]=8.168141e+00;  
CONSTANT area[k=10]=8.796459e+00;  
CONSTANT area[k=11]=9.424778e+00;  
CONSTANT area[k=12]=1.884956e+01;
```

\* Give the porosity in each cell

```
SIDE porosity[k=0]=0.33;  
SIDE porosity[k=1]=0.33;  
SIDE porosity[k=2]=0.33;  
SIDE porosity[k=3]=0.33;  
SIDE porosity[k=4]=0.33;  
SIDE porosity[k=5]=0.33;  
SIDE porosity[k=6]=0.33;  
SIDE porosity[k=7]=0.33;  
SIDE porosity[k=8]=0.33;  
SIDE porosity[k=9]=0.33;  
SIDE porosity[k=10]=0.33;  
SIDE porosity[k=11]=0.33;  
SIDE porosity[k=12]=0.03;
```

\* Give the volume of each cell

```
CONSTANT volume[k=0]=1.256637e-01;  
CONSTANT volume[k=1]=6.597345e-01;
```

```
CONSTANT volume[k=2]=3.455752e-01;  
CONSTANT volume[k=3]=4.084070e-01;  
CONSTANT volume[k=4]=4.712389e-01;  
CONSTANT volume[k=5]=5.340708e-01;  
CONSTANT volume[k=6]=5.969026e-01;  
CONSTANT volume[k=7]=6.597345e-01;  
CONSTANT volume[k=8]=7.225663e-01;  
CONSTANT volume[k=9]=7.853982e-01;  
CONSTANT volume[k=10]=8.482300e-01;  
CONSTANT volume[k=11]=9.110619e-01;  
CONSTANT volume[k=12]=2.120575e+01;
```

\* Give the mass of each element as a SIDE variable

```
SIDE M_1_1=m_1_1+m_11_1;  
SIDE M_1_2=m_1_2+m_11_2;  
SIDE M_2_1=m_2_1+m_6_1+m_7_1+m_8_1+m_12_1;  
SIDE M_2_2=m_2_2+m_6_2+m_7_2+m_8_2+m_12_2;  
SIDE M_3_1=m_3_1+m_9_1;  
SIDE M_3_2=m_3_2+m_9_2;  
SIDE M_4_1=m_4_1+m_10_1;  
SIDE M_4_2=m_4_2+m_10_2;  
SIDE M_5_1=m_5_1;  
SIDE M_5_2=m_5_2;
```

\* Give the concentration of each isotope as SIDE variables of the mass

```
SIDE c_1_1=m_1_1/(volume*porosity);  
SIDE c_1_2=m_1_2/(volume*porosity);  
SIDE c_2_1=m_2_1/(volume*porosity);  
SIDE c_2_2=m_2_2/(volume*porosity);  
SIDE c_3_1=m_3_1/(volume*porosity);  
SIDE c_3_2=m_3_2/(volume*porosity);  
SIDE c_4_1=m_4_1/(volume*porosity);  
SIDE c_4_2=m_4_2/(volume*porosity);  
SIDE c_5_1=m_5_1/(volume*porosity);  
SIDE c_5_2=m_5_2/(volume*porosity);  
SIDE c_6_1=m_6_1/(volume*porosity);  
SIDE c_6_2=m_6_2/(volume*porosity);  
SIDE c_7_1=m_7_1/(volume*porosity);  
SIDE c_7_2=m_7_2/(volume*porosity);  
SIDE c_8_1=m_8_1/(volume*porosity);  
SIDE c_8_2=m_8_2/(volume*porosity);  
SIDE c_9_1=m_9_1/(volume*porosity);  
SIDE c_9_2=m_9_2/(volume*porosity);  
SIDE c_10_1=m_10_1/(volume*porosity);  
SIDE c_10_2=m_10_2/(volume*porosity);  
SIDE c_11_1=m_11_1/(volume*porosity);  
SIDE c_11_2=m_11_2/(volume*porosity);  
SIDE c_12_1=m_12_1/(volume*porosity);  
SIDE c_12_2=m_12_2/(volume*porosity);
```

\* Give the concentration of each element as SIDE variables of the mass

```
SIDE C_1_1=M_1_1/(volume*porosity);  
SIDE C_1_2=M_1_2/(volume*porosity);  
SIDE C_2_1=M_2_1/(volume*porosity);  
SIDE C_2_2=M_2_2/(volume*porosity);  
SIDE C_3_1=M_3_1/(volume*porosity);  
SIDE C_3_2=M_3_2/(volume*porosity);  
SIDE C_4_1=M_4_1/(volume*porosity);  
SIDE C_4_2=M_4_2/(volume*porosity);  
SIDE C_5_1=M_5_1/(volume*porosity);  
SIDE C_5_2=M_5_2/(volume*porosity);
```

\* Give the concentration of each isotope in chemical state if required

SIDE s\_1\_1=c\_1\_1/KPu;  
SIDE s\_1\_2=(KPu-1)\*c\_1\_1/KPu;  
SIDE s\_2\_1=c\_2\_1/KU;  
SIDE s\_2\_2=(KU-1)\*c\_2\_1/KU;  
SIDE s\_3\_1=c\_3\_1/KTh;  
SIDE s\_3\_2=(KTh-1)\*c\_3\_1/KTh;  
SIDE s\_4\_1=c\_4\_1/KAm;  
SIDE s\_4\_2=(KAm-1)\*c\_4\_1/KAm;  
SIDE s\_5\_1=c\_5\_1/KNp;  
SIDE s\_5\_2=(KNp-1)\*c\_5\_1/KNp;  
SIDE s\_6\_1=c\_6\_1/KU;  
SIDE s\_6\_2=(KU-1)\*c\_6\_1/KU;  
SIDE s\_7\_1=c\_7\_1/KU;  
SIDE s\_7\_2=(KU-1)\*c\_7\_1/KU;  
SIDE s\_8\_1=c\_8\_1/KU;  
SIDE s\_8\_2=(KU-1)\*c\_8\_1/KU;  
SIDE s\_9\_1=c\_9\_1/KTh;  
SIDE s\_9\_2=(KTh-1)\*c\_9\_1/KTh;  
SIDE s\_10\_1=c\_10\_1/KAm;  
SIDE s\_10\_2=(KAm-1)\*c\_10\_1/KAm;  
SIDE s\_11\_1=c\_11\_1/KPu;  
SIDE s\_11\_2=(KPu-1)\*c\_11\_1/KPu;  
SIDE s\_12\_1=c\_12\_1/KU;  
SIDE s\_12\_2=(KU-1)\*c\_12\_1/KU;

\* Give the mass of each isotope in chemical state if required

SIDE n\_1\_1=porosity\*volume\*s\_1\_1;  
SIDE n\_1\_2=porosity\*volume\*s\_1\_2;  
SIDE n\_2\_1=porosity\*volume\*s\_2\_1;  
SIDE n\_2\_2=porosity\*volume\*s\_2\_2;  
SIDE n\_3\_1=porosity\*volume\*s\_3\_1;  
SIDE n\_3\_2=porosity\*volume\*s\_3\_2;  
SIDE n\_4\_1=porosity\*volume\*s\_4\_1;  
SIDE n\_4\_2=porosity\*volume\*s\_4\_2;  
SIDE n\_5\_1=porosity\*volume\*s\_5\_1;  
SIDE n\_5\_2=porosity\*volume\*s\_5\_2;  
SIDE n\_6\_1=porosity\*volume\*s\_6\_1;  
SIDE n\_6\_2=porosity\*volume\*s\_6\_2;  
SIDE n\_7\_1=porosity\*volume\*s\_7\_1;  
SIDE n\_7\_2=porosity\*volume\*s\_7\_2;  
SIDE n\_8\_1=porosity\*volume\*s\_8\_1;  
SIDE n\_8\_2=porosity\*volume\*s\_8\_2;  
SIDE n\_9\_1=porosity\*volume\*s\_9\_1;  
SIDE n\_9\_2=porosity\*volume\*s\_9\_2;  
SIDE n\_10\_1=porosity\*volume\*s\_10\_1;  
SIDE n\_10\_2=porosity\*volume\*s\_10\_2;  
SIDE n\_11\_1=porosity\*volume\*s\_11\_1;  
SIDE n\_11\_2=porosity\*volume\*s\_11\_2;  
SIDE n\_12\_1=porosity\*volume\*s\_12\_1;  
SIDE n\_12\_2=porosity\*volume\*s\_12\_2;

\* Give the concentration of each element in chemical state if required

SIDE S\_1\_1=s\_1\_1+s\_11\_1;  
SIDE S\_1\_2=s\_1\_2+s\_11\_2;  
SIDE S\_2\_1=s\_2\_1+s\_6\_1+s\_7\_1+s\_8\_1+s\_12\_1;  
SIDE S\_2\_2=s\_2\_2+s\_6\_2+s\_7\_2+s\_8\_2+s\_12\_2;  
SIDE S\_3\_1=s\_3\_1+s\_9\_1;  
SIDE S\_3\_2=s\_3\_2+s\_9\_2;  
SIDE S\_4\_1=s\_4\_1+s\_10\_1;  
SIDE S\_4\_2=s\_4\_2+s\_10\_2;  
SIDE S\_5\_1=s\_5\_1;  
SIDE S\_5\_2=s\_5\_2;

\* Give the mass of each element in chemical state if required

SIDE N\_1\_1=n\_1\_1+n\_11\_1;  
SIDE N\_1\_2=n\_1\_2+n\_11\_2;  
SIDE N\_2\_1=n\_2\_1+n\_6\_1+n\_7\_1+n\_8\_1+n\_12\_1;  
SIDE N\_2\_2=n\_2\_2+n\_6\_2+n\_7\_2+n\_8\_2+n\_12\_2;  
SIDE N\_3\_1=n\_3\_1+n\_9\_1;  
SIDE N\_3\_2=n\_3\_2+n\_9\_2;  
SIDE N\_4\_1=n\_4\_1+n\_10\_1;  
SIDE N\_4\_2=n\_4\_2+n\_10\_2;  
SIDE N\_5\_1=n\_5\_1;  
SIDE N\_5\_2=n\_5\_2;

\* Give the average mobility as a SIDE variable

SIDE alpha\_1\_1[0<=k<1]=2.84E-2/KPu;  
SIDE alpha\_1\_1[1<=k<2]=2.84E-2/KPu;  
SIDE alpha\_1\_1[2<=k<12]=2.84E-2/KPu;  
SIDE alpha\_1\_1[12<=k]=2.84E-2/KPu;  
CONSTANT alpha\_1\_2[0<=k<1]=0.0;  
CONSTANT alpha\_1\_2[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT alpha\_1\_2[2<=k<12]=0.0;  
CONSTANT alpha\_1\_2[12<=k]=0.0;  
SIDE alpha\_2\_1[0<=k<1]=2.84E-2/KU;  
SIDE alpha\_2\_1[1<=k<2]=2.84E-2/KU;  
SIDE alpha\_2\_1[2<=k<12]=2.84E-2/KU;  
SIDE alpha\_2\_1[12<=k]=2.84E-2/KU;  
CONSTANT alpha\_2\_2[0<=k<1]=0.0;  
CONSTANT alpha\_2\_2[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT alpha\_2\_2[2<=k<12]=0.0;  
CONSTANT alpha\_2\_2[12<=k]=0.0;  
SIDE alpha\_3\_1[0<=k<1]=2.84E-2/KTh;  
SIDE alpha\_3\_1[1<=k<2]=2.84E-2/KTh;  
SIDE alpha\_3\_1[2<=k<12]=2.84E-2/KTh;  
SIDE alpha\_3\_1[12<=k]=2.84E-2/KTh;  
CONSTANT alpha\_3\_2[0<=k<1]=0.0;  
CONSTANT alpha\_3\_2[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT alpha\_3\_2[2<=k<12]=0.0;  
CONSTANT alpha\_3\_2[12<=k]=0.0;  
SIDE alpha\_4\_1[0<=k<1]=2.84E-2/KAm;  
SIDE alpha\_4\_1[1<=k<2]=2.84E-2/KAm;  
SIDE alpha\_4\_1[2<=k<12]=2.84E-2/KAm;  
SIDE alpha\_4\_1[12<=k]=2.84E-2/KAm;  
CONSTANT alpha\_4\_2[0<=k<1]=0.0;  
CONSTANT alpha\_4\_2[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT alpha\_4\_2[2<=k<12]=0.0;  
CONSTANT alpha\_4\_2[12<=k]=0.0;  
SIDE alpha\_5\_1[0<=k<1]=2.84E-2/KNp;  
SIDE alpha\_5\_1[1<=k<2]=2.84E-2/KNp;  
SIDE alpha\_5\_1[2<=k<12]=2.84E-2/KNp;  
SIDE alpha\_5\_1[12<=k]=2.84E-2/KNp;  
CONSTANT alpha\_5\_2[0<=k<1]=0.0;  
CONSTANT alpha\_5\_2[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT alpha\_5\_2[2<=k<12]=0.0;  
CONSTANT alpha\_5\_2[12<=k]=0.0;  
SIDE alpha\_6\_1[0<=k<1]=2.84E-2/KU;  
SIDE alpha\_6\_1[1<=k<2]=2.84E-2/KU;  
SIDE alpha\_6\_1[2<=k<12]=2.84E-2/KU;  
SIDE alpha\_6\_1[12<=k]=2.84E-2/KU;  
CONSTANT alpha\_6\_2[0<=k<1]=0.0;  
CONSTANT alpha\_6\_2[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT alpha\_6\_2[2<=k<12]=0.0;  
CONSTANT alpha\_6\_2[12<=k]=0.0;  
SIDE alpha\_7\_1[0<=k<1]=2.84E-2/KU;  
SIDE alpha\_7\_1[1<=k<2]=2.84E-2/KU;  
SIDE alpha\_7\_1[2<=k<12]=2.84E-2/KU;  
SIDE alpha\_7\_1[12<=k]=2.84E-2/KU;  
CONSTANT alpha\_7\_2[0<=k<1]=0.0;  
CONSTANT alpha\_7\_2[1<=k<2]=0.0;



```
CONSTANT alpha_7_2[2<=k<12]=0.0;
CONSTANT alpha_7_2[12<=k]=0.0;
SIDE alpha_8_1[0<=k<1]=2.84E-2/KU;
SIDE alpha_8_1[1<=k<2]=2.84E-2/KU;
SIDE alpha_8_1[2<=k<12]=2.84E-2/KU;
SIDE alpha_8_1[12<=k]=2.84E-2/KU;
CONSTANT alpha_8_2[0<=k<1]=0.0;
CONSTANT alpha_8_2[1<=k<2]=0.0;
CONSTANT alpha_8_2[2<=k<12]=0.0;
CONSTANT alpha_8_2[12<=k]=0.0;
SIDE alpha_9_1[0<=k<1]=2.84E-2/KTh;
SIDE alpha_9_1[1<=k<2]=2.84E-2/KTh;
SIDE alpha_9_1[2<=k<12]=2.84E-2/KTh;
SIDE alpha_9_1[12<=k]=2.84E-2/KTh;
CONSTANT alpha_9_2[0<=k<1]=0.0;
CONSTANT alpha_9_2[1<=k<2]=0.0;
CONSTANT alpha_9_2[2<=k<12]=0.0;
CONSTANT alpha_9_2[12<=k]=0.0;
SIDE alpha_10_1[0<=k<1]=2.84E-2/KAm;
SIDE alpha_10_1[1<=k<2]=2.84E-2/KAm;
SIDE alpha_10_1[2<=k<12]=2.84E-2/KAm;
SIDE alpha_10_1[12<=k]=2.84E-2/KAm;
CONSTANT alpha_10_2[0<=k<1]=0.0;
CONSTANT alpha_10_2[1<=k<2]=0.0;
CONSTANT alpha_10_2[2<=k<12]=0.0;
CONSTANT alpha_10_2[12<=k]=0.0;
SIDE alpha_11_1[0<=k<1]=2.84E-2/KPu;
SIDE alpha_11_1[1<=k<2]=2.84E-2/KPu;
SIDE alpha_11_1[2<=k<12]=2.84E-2/KPu;
SIDE alpha_11_1[12<=k]=2.84E-2/KPu;
CONSTANT alpha_11_2[0<=k<1]=0.0;
CONSTANT alpha_11_2[1<=k<2]=0.0;
CONSTANT alpha_11_2[2<=k<12]=0.0;
CONSTANT alpha_11_2[12<=k]=0.0;
SIDE alpha_12_1[0<=k<1]=2.84E-2/KU;
SIDE alpha_12_1[1<=k<2]=2.84E-2/KU;
SIDE alpha_12_1[2<=k<12]=2.84E-2/KU;
SIDE alpha_12_1[12<=k]=2.84E-2/KU;
CONSTANT alpha_12_2[0<=k<1]=0.0;
CONSTANT alpha_12_2[1<=k<2]=0.0;
CONSTANT alpha_12_2[2<=k<12]=0.0;
CONSTANT alpha_12_2[12<=k]=0.0;
```

\* Give the Flux tensor as a SIDE variable

```
SIDE Flux_1_1[k<12]=area*(alpha_1_1[k+1]*c_1_1[k+1]-alpha_1_1*c_1_1)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_1_1[k=12]=0.0;
SIDE Flux_1_2[k<12]=area*(alpha_1_2[k+1]*c_1_2[k+1]-alpha_1_2*c_1_2)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_1_2[k=12]=0.0;
SIDE Flux_2_1[k<12]=area*(alpha_2_1[k+1]*c_2_1[k+1]-alpha_2_1*c_2_1)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_2_1[k=12]=0.0;
SIDE Flux_2_2[k<12]=area*(alpha_2_2[k+1]*c_2_2[k+1]-alpha_2_2*c_2_2)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_2_2[k=12]=0.0;
SIDE Flux_3_1[k<12]=area*(alpha_3_1[k+1]*c_3_1[k+1]-alpha_3_1*c_3_1)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_3_1[k=12]=0.0;
SIDE Flux_3_2[k<12]=area*(alpha_3_2[k+1]*c_3_2[k+1]-alpha_3_2*c_3_2)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_3_2[k=12]=0.0;
SIDE Flux_4_1[k<12]=area*(alpha_4_1[k+1]*c_4_1[k+1]-alpha_4_1*c_4_1)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_4_1[k=12]=0.0;
SIDE Flux_4_2[k<12]=area*(alpha_4_2[k+1]*c_4_2[k+1]-alpha_4_2*c_4_2)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_4_2[k=12]=0.0;
SIDE Flux_5_1[k<12]=area*(alpha_5_1[k+1]*c_5_1[k+1]-alpha_5_1*c_5_1)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_5_1[k=12]=0.0;
SIDE Flux_5_2[k<12]=area*(alpha_5_2[k+1]*c_5_2[k+1]-alpha_5_2*c_5_2)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_5_2[k=12]=0.0;
SIDE Flux_6_1[k<12]=area*(alpha_6_1[k+1]*c_6_1[k+1]-alpha_6_1*c_6_1)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_6_1[k=12]=0.0;
```

```

SIDE Flux_6_2[k<12]=area*(alpha_6_2[k+1]*c_6_2[k+1]-alpha_6_2*c_6_2)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_6_2[k=12]=0.0;
SIDE Flux_7_1[k<12]=area*(alpha_7_1[k+1]*c_7_1[k+1]-alpha_7_1*c_7_1)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_7_1[k=12]=0.0;
SIDE Flux_7_2[k<12]=area*(alpha_7_2[k+1]*c_7_2[k+1]-alpha_7_2*c_7_2)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_7_2[k=12]=0.0;
SIDE Flux_8_1[k<12]=area*(alpha_8_1[k+1]*c_8_1[k+1]-alpha_8_1*c_8_1)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_8_1[k=12]=0.0;
SIDE Flux_8_2[k<12]=area*(alpha_8_2[k+1]*c_8_2[k+1]-alpha_8_2*c_8_2)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_8_2[k=12]=0.0;
SIDE Flux_9_1[k<12]=area*(alpha_9_1[k+1]*c_9_1[k+1]-alpha_9_1*c_9_1)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_9_1[k=12]=0.0;
SIDE Flux_9_2[k<12]=area*(alpha_9_2[k+1]*c_9_2[k+1]-alpha_9_2*c_9_2)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_9_2[k=12]=0.0;
SIDE Flux_10_1[k<12]=area*(alpha_10_1[k+1]*c_10_1[k+1]-alpha_10_1*c_10_1)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_10_1[k=12]=0.0;
SIDE Flux_10_2[k<12]=area*(alpha_10_2[k+1]*c_10_2[k+1]-alpha_10_2*c_10_2)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_10_2[k=12]=0.0;
SIDE Flux_11_1[k<12]=area*(alpha_11_1[k+1]*c_11_1[k+1]-alpha_11_1*c_11_1)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_11_1[k=12]=0.0;
SIDE Flux_11_2[k<12]=area*(alpha_11_2[k+1]*c_11_2[k+1]-alpha_11_2*c_11_2)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_11_2[k=12]=0.0;
SIDE Flux_12_1[k<12]=area*(alpha_12_1[k+1]*c_12_1[k+1]-alpha_12_1*c_12_1)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_12_1[k=12]=0.0;
SIDE Flux_12_2[k<12]=area*(alpha_12_2[k+1]*c_12_2[k+1]-alpha_12_2*c_12_2)/(cell[k+1]-cell);
SIDE Flux_12_2[k=12]=0.0;
    
```

\* Give the transport tensor as a SIDE variable

```

SIDE T_1_1[k=0]=Flux_1_1;
SIDE T_1_1[0<k]=Flux_1_1-Flux_1_1[k-1];
SIDE T_1_2[k=0]=Flux_1_2;
SIDE T_1_2[0<k]=Flux_1_2-Flux_1_2[k-1];
SIDE T_2_1[k=0]=Flux_2_1;
SIDE T_2_1[0<k]=Flux_2_1-Flux_2_1[k-1];
SIDE T_2_2[k=0]=Flux_2_2;
SIDE T_2_2[0<k]=Flux_2_2-Flux_2_2[k-1];
SIDE T_3_1[k=0]=Flux_3_1;
SIDE T_3_1[0<k]=Flux_3_1-Flux_3_1[k-1];
SIDE T_3_2[k=0]=Flux_3_2;
SIDE T_3_2[0<k]=Flux_3_2-Flux_3_2[k-1];
SIDE T_4_1[k=0]=Flux_4_1;
SIDE T_4_1[0<k]=Flux_4_1-Flux_4_1[k-1];
SIDE T_4_2[k=0]=Flux_4_2;
SIDE T_4_2[0<k]=Flux_4_2-Flux_4_2[k-1];
SIDE T_5_1[k=0]=Flux_5_1;
SIDE T_5_1[0<k]=Flux_5_1-Flux_5_1[k-1];
SIDE T_5_2[k=0]=Flux_5_2;
SIDE T_5_2[0<k]=Flux_5_2-Flux_5_2[k-1];
SIDE T_6_1[k=0]=Flux_6_1;
SIDE T_6_1[0<k]=Flux_6_1-Flux_6_1[k-1];
SIDE T_6_2[k=0]=Flux_6_2;
SIDE T_6_2[0<k]=Flux_6_2-Flux_6_2[k-1];
SIDE T_7_1[k=0]=Flux_7_1;
SIDE T_7_1[0<k]=Flux_7_1-Flux_7_1[k-1];
SIDE T_7_2[k=0]=Flux_7_2;
SIDE T_7_2[0<k]=Flux_7_2-Flux_7_2[k-1];
SIDE T_8_1[k=0]=Flux_8_1;
SIDE T_8_1[0<k]=Flux_8_1-Flux_8_1[k-1];
SIDE T_8_2[k=0]=Flux_8_2;
SIDE T_8_2[0<k]=Flux_8_2-Flux_8_2[k-1];
SIDE T_9_1[k=0]=Flux_9_1;
SIDE T_9_1[0<k]=Flux_9_1-Flux_9_1[k-1];
SIDE T_9_2[k=0]=Flux_9_2;
SIDE T_9_2[0<k]=Flux_9_2-Flux_9_2[k-1];
SIDE T_10_1[k=0]=Flux_10_1;
SIDE T_10_1[0<k]=Flux_10_1-Flux_10_1[k-1];
    
```

```
SIDE T_10_2[k=0]=Flux_10_2;  
SIDE T_10_2[0<k]=Flux_10_2-Flux_10_2[k-1];  
SIDE T_11_1[k=0]=Flux_11_1;  
SIDE T_11_1[0<k]=Flux_11_1-Flux_11_1[k-1];  
SIDE T_11_2[k=0]=Flux_11_2;  
SIDE T_11_2[0<k]=Flux_11_2-Flux_11_2[k-1];  
SIDE T_12_1[k=0]=Flux_12_1;  
SIDE T_12_1[0<k]=Flux_12_1-Flux_12_1[k-1];  
SIDE T_12_2[k=0]=Flux_12_2;  
SIDE T_12_2[0<k]=Flux_12_2-Flux_12_2[k-1];
```

\* Give the sources as a SIDE variable

```
SIDE J_1_1[0<=k<1]=leach*exp(-leach*t)*CPu240initial*exp(-Pu240lambda*t);  
CONSTANT J_1_1[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_1_1[2<=k<12]=0.0;  
SIDE J_1_1[12<=k]=-porosity*c_1_1*1.0/(KPu*length);  
CONSTANT J_1_2[0<=k<1]=0.0;  
CONSTANT J_1_2[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_1_2[2<=k<12]=0.0;  
CONSTANT J_1_2[12<=k]=0.0;  
SIDE J_2_1[0<=k<1]=leach*exp(-leach*t)*(CU236initial*exp(-U236lambda*t)+Pu240lambda*CPu240initial);  
CONSTANT J_2_1[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_2_1[2<=k<12]=0.0;  
SIDE J_2_1[12<=k]=-porosity*c_2_1*1.0/(KU*length);  
CONSTANT J_2_2[0<=k<1]=0.0;  
CONSTANT J_2_2[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_2_2[2<=k<12]=0.0;  
CONSTANT J_2_2[12<=k]=0.0;  
SIDE J_3_1[0<=k<1]=leach*exp(-leach*t)*(CTh232initial*exp(-Th232lambda*t)+U236lambda*CU236initial);  
CONSTANT J_3_1[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_3_1[2<=k<12]=0.0;  
SIDE J_3_1[12<=k]=-porosity*c_3_1*1.0/(KTh*length);  
CONSTANT J_3_2[0<=k<1]=0.0;  
CONSTANT J_3_2[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_3_2[2<=k<12]=0.0;  
CONSTANT J_3_2[12<=k]=0.0;  
SIDE J_4_1[0<=k<1]=leach*exp(-leach*t)*CAm241initial*exp(-Am241lambda*t);  
CONSTANT J_4_1[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_4_1[2<=k<12]=0.0;  
SIDE J_4_1[12<=k]=-porosity*c_4_1*1.0/(KAm*length);  
CONSTANT J_4_2[0<=k<1]=0.0;  
CONSTANT J_4_2[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_4_2[2<=k<12]=0.0;  
CONSTANT J_4_2[12<=k]=0.0;  
SIDE J_5_1[0<=k<1]=leach*exp(-leach*t)*(CNp237initial*exp(-Np237lambda*t)+Am241lambda*CAm241initial);  
CONSTANT J_5_1[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_5_1[2<=k<12]=0.0;  
SIDE J_5_1[12<=k]=-porosity*c_5_1*1.0/(KNp*length);  
CONSTANT J_5_2[0<=k<1]=0.0;  
CONSTANT J_5_2[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_5_2[2<=k<12]=0.0;  
CONSTANT J_5_2[12<=k]=0.0;  
SIDE J_6_1[0<=k<1]=leach*exp(-leach*t)*(CU233initial*exp(-U233lambda*t)+Np237lambda*CNp237initial);  
CONSTANT J_6_1[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_6_1[2<=k<12]=0.0;  
SIDE J_6_1[12<=k]=-porosity*c_6_1*1.0/(KU*length);  
CONSTANT J_6_2[0<=k<1]=0.0;  
CONSTANT J_6_2[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_6_2[2<=k<12]=0.0;  
CONSTANT J_6_2[12<=k]=0.0;  
SIDE J_7_1[0<=k<1]=leach*exp(-leach*t)*CU238initial*exp(-U238lambda*t);  
CONSTANT J_7_1[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_7_1[2<=k<12]=0.0;  
SIDE J_7_1[12<=k]=-porosity*c_7_1*1.0/(KU*length);  
CONSTANT J_7_2[0<=k<1]=0.0;  
CONSTANT J_7_2[1<=k<2]=0.0;
```

```
CONSTANT J_7_2[2<=k<12]=0.0;  
CONSTANT J_7_2[12<=k]=0.0;  
SIDE J_8_1[0<=k<1]=leach*exp(-leach*t)*(CU234initial*exp(-U234lambda*t)+U238lambda*CU238ir  
CONSTANT J_8_1[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_8_1[2<=k<12]=0.0;  
SIDE J_8_1[12<=k]=-porosity*c_8_1*1.0/(KU*length);  
CONSTANT J_8_2[0<=k<1]=0.0;  
CONSTANT J_8_2[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_8_2[2<=k<12]=0.0;  
CONSTANT J_8_2[12<=k]=0.0;  
SIDE J_9_1[0<=k<1]=leach*exp(-leach*t)*(CTh230initial*exp(-Th230lambda*t)+U234lambda*CU234  
CONSTANT J_9_1[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_9_1[2<=k<12]=0.0;  
SIDE J_9_1[12<=k]=-porosity*c_9_1*1.0/(KTh*length);  
CONSTANT J_9_2[0<=k<1]=0.0;  
CONSTANT J_9_2[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_9_2[2<=k<12]=0.0;  
CONSTANT J_9_2[12<=k]=0.0;  
SIDE J_10_1[0<=k<1]=leach*exp(-leach*t)*CAm243initial*exp(-Am243lambda*t);  
CONSTANT J_10_1[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_10_1[2<=k<12]=0.0;  
SIDE J_10_1[12<=k]=-porosity*c_10_1*1.0/(KAm*length);  
CONSTANT J_10_2[0<=k<1]=0.0;  
CONSTANT J_10_2[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_10_2[2<=k<12]=0.0;  
CONSTANT J_10_2[12<=k]=0.0;  
SIDE J_11_1[0<=k<1]=leach*exp(-leach*t)*(CPu239initial*exp(-Pu239lambda*t)+Am243lambda*CAm  
CONSTANT J_11_1[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_11_1[2<=k<12]=0.0;  
SIDE J_11_1[12<=k]=-porosity*c_11_1*1.0/(KPu*length);  
CONSTANT J_11_2[0<=k<1]=0.0;  
CONSTANT J_11_2[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_11_2[2<=k<12]=0.0;  
CONSTANT J_11_2[12<=k]=0.0;  
SIDE J_12_1[0<=k<1]=leach*exp(-leach*t)*(CU235initial*exp(-U235lambda*t)+Pu239lambda*CPu23  
CONSTANT J_12_1[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_12_1[2<=k<12]=0.0;  
SIDE J_12_1[12<=k]=-porosity*c_12_1*1.0/(KU*length);  
CONSTANT J_12_2[0<=k<1]=0.0;  
CONSTANT J_12_2[1<=k<2]=0.0;  
CONSTANT J_12_2[2<=k<12]=0.0;  
CONSTANT J_12_2[12<=k]=0.0;
```

\* Give the reaction as a SIDE variable

```
SIDE R_1_1=(-MuPu*(S_1_1-CPu)*hsmooth(10*(hsmooth((S_1_1-CPu),CPu*1e-1)* hsmooth(s_1_1,CPu  
SIDE R_1_2=(MuPu*(S_1_1-CPu)*hsmooth(10*(hsmooth((S_1_1-CPu),CPu*1e-1)* hsmooth(s_1_1,CPu'  
SIDE R_2_1=(-MuU*(S_2_1-CU)*hsmooth(10*(hsmooth((S_2_1-CU),CU*1e-1)* hsmooth(s_2_1,CU*1e-1)  
SIDE R_2_2=(MuU*(S_2_1-CU)*hsmooth(10*(hsmooth((S_2_1-CU),CU*1e-1)* hsmooth(s_2_1,CU*1e-1)  
SIDE R_3_1=(-MuTh*(S_3_1-CTh)*hsmooth(10*(hsmooth((S_3_1-CTh),CTh*1e-1)* hsmooth(s_3_1,CTh  
SIDE R_3_2=(MuTh*(S_3_1-CTh)*hsmooth(10*(hsmooth((S_3_1-CTh),CTh*1e-1)* hsmooth(s_3_1,CTh'  
SIDE R_4_1=(-MuAm*(S_4_1-CAm)*hsmooth(10*(hsmooth((S_4_1-CAm),CAm*1e-1)* hsmooth(s_4_1,CAm  
SIDE R_4_2=(MuAm*(S_4_1-CAm)*hsmooth(10*(hsmooth((S_4_1-CAm),CAm*1e-1)* hsmooth(s_4_1,CAm'  
SIDE R_5_1=(-MuNp*(S_5_1-CNp)*hsmooth(10*(hsmooth((S_5_1-CNp),CNp*1e-1)* hsmooth(s_5_1,CNp  
SIDE R_5_2=(MuNp*(S_5_1-CNp)*hsmooth(10*(hsmooth((S_5_1-CNp),CNp*1e-1)* hsmooth(s_5_1,CNp'  
SIDE R_6_1=(-MuU*(S_2_1-CU)*hsmooth(10*(hsmooth((S_2_1-CU),CU*1e-1)* hsmooth(s_6_1,CU*1e-1)  
SIDE R_6_2=(MuU*(S_2_1-CU)*hsmooth(10*(hsmooth((S_2_1-CU),CU*1e-1)* hsmooth(s_6_1,CU*1e-1)  
SIDE R_7_1=(-MuU*(S_2_1-CU)*hsmooth(10*(hsmooth((S_2_1-CU),CU*1e-1)* hsmooth(s_7_1,CU*1e-1)  
SIDE R_7_2=(MuU*(S_2_1-CU)*hsmooth(10*(hsmooth((S_2_1-CU),CU*1e-1)* hsmooth(s_7_1,CU*1e-1)  
SIDE R_8_1=(-MuU*(S_2_1-CU)*hsmooth(10*(hsmooth((S_2_1-CU),CU*1e-1)* hsmooth(s_8_1,CU*1e-1)  
SIDE R_8_2=(MuU*(S_2_1-CU)*hsmooth(10*(hsmooth((S_2_1-CU),CU*1e-1)* hsmooth(s_8_1,CU*1e-1)  
SIDE R_9_1=(-MuTh*(S_3_1-CTh)*hsmooth(10*(hsmooth((S_3_1-CTh),CTh*1e-1)* hsmooth(s_9_1,CTh  
SIDE R_9_2=(MuTh*(S_3_1-CTh)*hsmooth(10*(hsmooth((S_3_1-CTh),CTh*1e-1)* hsmooth(s_9_1,CTh'  
SIDE R_10_1=(-MuAm*(S_4_1-CAm)*hsmooth(10*(hsmooth((S_4_1-CAm),CAm*1e-1)* hsmooth(s_10_1,C  
SIDE R_10_2=(MuAm*(S_4_1-CAm)*hsmooth(10*(hsmooth((S_4_1-CAm),CAm*1e-1)* hsmooth(s_10_1,C  
SIDE R_11_1=(-MuPu*(S_1_1-CPu)*hsmooth(10*(hsmooth((S_1_1-CPu),CPu*1e-1)* hsmooth(s_11_1,C  
SIDE R_11_2=(MuPu*(S_1_1-CPu)*hsmooth(10*(hsmooth((S_1_1-CPu),CPu*1e-1)* hsmooth(s_11_1,C
```

SIDE R\_12\_1=(-MuU\*(S\_2\_1-CU)\*hsmooth(10\*(hsmooth((S\_2\_1-CU),CU\*1e-1)\* hsmooth(s\_12\_1,CU\*1e-1)  
SIDE R\_12\_2=(MuU\*(S\_2\_1-CU)\*hsmooth(10\*(hsmooth((S\_2\_1-CU),CU\*1e-1)\* hsmooth(s\_12\_1,CU\*1e-1

\* Give the tensor equation for the time evolution of the mass

EQUATION d(m\_1\_1,t)=-Pu240lambda\*m\_1\_1+T\_1\_1+J\_1\_1+R\_1\_1;  
EQUATION d(m\_1\_2,t)=-Pu240lambda\*m\_1\_2+T\_1\_2+J\_1\_2+R\_1\_2;  
EQUATION d(m\_2\_1,t)=-U236lambda\*m\_2\_1+Pu240lambda\*m\_1\_1+T\_2\_1+J\_2\_1+R\_2\_1;  
EQUATION d(m\_2\_2,t)=-U236lambda\*m\_2\_2+Pu240lambda\*m\_1\_2+T\_2\_2+J\_2\_2+R\_2\_2;  
EQUATION d(m\_3\_1,t)=-Th232lambda\*m\_3\_1+U236lambda\*m\_2\_1+T\_3\_1+J\_3\_1+R\_3\_1;  
EQUATION d(m\_3\_2,t)=-Th232lambda\*m\_3\_2+U236lambda\*m\_2\_2+T\_3\_2+J\_3\_2+R\_3\_2;  
EQUATION d(m\_4\_1,t)=-Am241lambda\*m\_4\_1+T\_4\_1+J\_4\_1+R\_4\_1;  
EQUATION d(m\_4\_2,t)=-Am241lambda\*m\_4\_2+T\_4\_2+J\_4\_2+R\_4\_2;  
EQUATION d(m\_5\_1,t)=-Np237lambda\*m\_5\_1+Am241lambda\*m\_4\_1+T\_5\_1+J\_5\_1+R\_5\_1;  
EQUATION d(m\_5\_2,t)=-Np237lambda\*m\_5\_2+Am241lambda\*m\_4\_2+T\_5\_2+J\_5\_2+R\_5\_2;  
EQUATION d(m\_6\_1,t)=-U233lambda\*m\_6\_1+Np237lambda\*m\_5\_1+T\_6\_1+J\_6\_1+R\_6\_1;  
EQUATION d(m\_6\_2,t)=-U233lambda\*m\_6\_2+Np237lambda\*m\_5\_2+T\_6\_2+J\_6\_2+R\_6\_2;  
EQUATION d(m\_7\_1,t)=-U238lambda\*m\_7\_1+T\_7\_1+J\_7\_1+R\_7\_1;  
EQUATION d(m\_7\_2,t)=-U238lambda\*m\_7\_2+T\_7\_2+J\_7\_2+R\_7\_2;  
EQUATION d(m\_8\_1,t)=-U234lambda\*m\_8\_1+U238lambda\*m\_7\_1+T\_8\_1+J\_8\_1+R\_8\_1;  
EQUATION d(m\_8\_2,t)=-U234lambda\*m\_8\_2+U238lambda\*m\_7\_2+T\_8\_2+J\_8\_2+R\_8\_2;  
EQUATION d(m\_9\_1,t)=-Th230lambda\*m\_9\_1+U234lambda\*m\_8\_1+T\_9\_1+J\_9\_1+R\_9\_1;  
EQUATION d(m\_9\_2,t)=-Th230lambda\*m\_9\_2+U234lambda\*m\_8\_2+T\_9\_2+J\_9\_2+R\_9\_2;  
EQUATION d(m\_10\_1,t)=-Am243lambda\*m\_10\_1+T\_10\_1+J\_10\_1+R\_10\_1;  
EQUATION d(m\_10\_2,t)=-Am243lambda\*m\_10\_2+T\_10\_2+J\_10\_2+R\_10\_2;  
EQUATION d(m\_11\_1,t)=-Pu239lambda\*m\_11\_1+Am243lambda\*m\_10\_1+T\_11\_1+J\_11\_1+R\_11\_1;  
EQUATION d(m\_11\_2,t)=-Pu239lambda\*m\_11\_2+Am243lambda\*m\_10\_2+T\_11\_2+J\_11\_2+R\_11\_2;  
EQUATION d(m\_12\_1,t)=-U235lambda\*m\_12\_1+Pu239lambda\*m\_11\_1+T\_12\_1+J\_12\_1+R\_12\_1;  
EQUATION d(m\_12\_2,t)=-U235lambda\*m\_12\_2+Pu239lambda\*m\_11\_2+T\_12\_2+J\_12\_2+R\_12\_2;

\* Give the initial masses

INITIAL m\_1\_1=0.0;  
INITIAL m\_1\_2=0.0;  
INITIAL m\_2\_1=0.0;  
INITIAL m\_2\_2=0.0;  
INITIAL m\_3\_1=0.0;  
INITIAL m\_3\_2=0.0;  
INITIAL m\_4\_1=0.0;  
INITIAL m\_4\_2=0.0;  
INITIAL m\_5\_1=0.0;  
INITIAL m\_5\_2=0.0;  
INITIAL m\_6\_1=0.0;  
INITIAL m\_6\_2=0.0;  
INITIAL m\_7\_1=0.0;  
INITIAL m\_7\_2=0.0;  
INITIAL m\_8\_1=0.0;  
INITIAL m\_8\_2=0.0;  
INITIAL m\_9\_1=0.0;  
INITIAL m\_9\_2=0.0;  
INITIAL m\_10\_1=0.0;  
INITIAL m\_10\_2=0.0;  
INITIAL m\_11\_1=0.0;  
INITIAL m\_11\_2=0.0;  
INITIAL m\_12\_1=0.0;  
INITIAL m\_12\_2=0.0;

\* Give the weighting of the masses

WEIGHT m\_1\_1=1.0/(abs(m\_1\_1)+1.e-8);  
WEIGHT m\_1\_2=1.0/(abs(m\_1\_2)+1.e-8);  
WEIGHT m\_2\_1=1.0/(abs(m\_2\_1)+1.e-8);  
WEIGHT m\_2\_2=1.0/(abs(m\_2\_2)+1.e-8);  
WEIGHT m\_3\_1=1.0/(abs(m\_3\_1)+1.e-8);  
WEIGHT m\_3\_2=1.0/(abs(m\_3\_2)+1.e-8);  
WEIGHT m\_4\_1=1.0/(abs(m\_4\_1)+1.e-8);  
WEIGHT m\_4\_2=1.0/(abs(m\_4\_2)+1.e-8);

WEIGHT m\_5\_1=1.0/(abs(m\_5\_1)+1.e-8);  
WEIGHT m\_5\_2=1.0/(abs(m\_5\_2)+1.e-8);  
WEIGHT m\_6\_1=1.0/(abs(m\_6\_1)+1.e-8);  
WEIGHT m\_6\_2=1.0/(abs(m\_6\_2)+1.e-8);  
WEIGHT m\_7\_1=1.0/(abs(m\_7\_1)+1.e-8);  
WEIGHT m\_7\_2=1.0/(abs(m\_7\_2)+1.e-8);  
WEIGHT m\_8\_1=1.0/(abs(m\_8\_1)+1.e-8);  
WEIGHT m\_8\_2=1.0/(abs(m\_8\_2)+1.e-8);  
WEIGHT m\_9\_1=1.0/(abs(m\_9\_1)+1.e-8);  
WEIGHT m\_9\_2=1.0/(abs(m\_9\_2)+1.e-8);  
WEIGHT m\_10\_1=1.0/(abs(m\_10\_1)+1.e-8);  
WEIGHT m\_10\_2=1.0/(abs(m\_10\_2)+1.e-8);  
WEIGHT m\_11\_1=1.0/(abs(m\_11\_1)+1.e-8);  
WEIGHT m\_11\_2=1.0/(abs(m\_11\_2)+1.e-8);  
WEIGHT m\_12\_1=1.0/(abs(m\_12\_1)+1.e-8);  
WEIGHT m\_12\_2=1.0/(abs(m\_12\_2)+1.e-8);

\* Monitor the outflux to the far field

SIDE outflow\_1[k=0]=J\_1\_1+J\_1\_2;  
CONSTANT outflow\_1[0<k<12]=0.0;  
SIDE outflow\_1[k=12]=-J\_1\_1-J\_1\_2;  
SIDE outflow\_2[k=0]=J\_2\_1+J\_2\_2;  
CONSTANT outflow\_2[0<k<12]=0.0;  
SIDE outflow\_2[k=12]=-J\_2\_1-J\_2\_2;  
SIDE outflow\_3[k=0]=J\_3\_1+J\_3\_2;  
CONSTANT outflow\_3[0<k<12]=0.0;  
SIDE outflow\_3[k=12]=-J\_3\_1-J\_3\_2;  
SIDE outflow\_4[k=0]=J\_4\_1+J\_4\_2;  
CONSTANT outflow\_4[0<k<12]=0.0;  
SIDE outflow\_4[k=12]=-J\_4\_1-J\_4\_2;  
SIDE outflow\_5[k=0]=J\_5\_1+J\_5\_2;  
CONSTANT outflow\_5[0<k<12]=0.0;  
SIDE outflow\_5[k=12]=-J\_5\_1-J\_5\_2;  
SIDE outflow\_6[k=0]=J\_6\_1+J\_6\_2;  
CONSTANT outflow\_6[0<k<12]=0.0;  
SIDE outflow\_6[k=12]=-J\_6\_1-J\_6\_2;  
SIDE outflow\_7[k=0]=J\_7\_1+J\_7\_2;  
CONSTANT outflow\_7[0<k<12]=0.0;  
SIDE outflow\_7[k=12]=-J\_7\_1-J\_7\_2;  
SIDE outflow\_8[k=0]=J\_8\_1+J\_8\_2;  
CONSTANT outflow\_8[0<k<12]=0.0;  
SIDE outflow\_8[k=12]=-J\_8\_1-J\_8\_2;  
SIDE outflow\_9[k=0]=J\_9\_1+J\_9\_2;  
CONSTANT outflow\_9[0<k<12]=0.0;  
SIDE outflow\_9[k=12]=-J\_9\_1-J\_9\_2;  
SIDE outflow\_10[k=0]=J\_10\_1+J\_10\_2;  
CONSTANT outflow\_10[0<k<12]=0.0;  
SIDE outflow\_10[k=12]=-J\_10\_1-J\_10\_2;  
SIDE outflow\_11[k=0]=J\_11\_1+J\_11\_2;  
CONSTANT outflow\_11[0<k<12]=0.0;  
SIDE outflow\_11[k=12]=-J\_11\_1-J\_11\_2;  
SIDE outflow\_12[k=0]=J\_12\_1+J\_12\_2;  
CONSTANT outflow\_12[0<k<12]=0.0;  
SIDE outflow\_12[k=12]=-J\_12\_1-J\_12\_2;

EQUATION d(massin\_1,t)=outflow\_1[k=0];  
EQUATION d(massin\_2,t)=outflow\_2[k=0];  
EQUATION d(massin\_3,t)=outflow\_3[k=0];  
EQUATION d(massin\_4,t)=outflow\_4[k=0];  
EQUATION d(massin\_5,t)=outflow\_5[k=0];  
EQUATION d(massin\_6,t)=outflow\_6[k=0];  
EQUATION d(massin\_7,t)=outflow\_7[k=0];  
EQUATION d(massin\_8,t)=outflow\_8[k=0];  
EQUATION d(massin\_9,t)=outflow\_9[k=0];  
EQUATION d(massin\_10,t)=outflow\_10[k=0];  
EQUATION d(massin\_11,t)=outflow\_11[k=0];

EQUATION d(massin\_12,t)=outflow\_12[k=0];

EQUATION d(escaped\_1,t)=outflow\_1[k=12];  
EQUATION d(escaped\_2,t)=outflow\_2[k=12];  
EQUATION d(escaped\_3,t)=outflow\_3[k=12];  
EQUATION d(escaped\_4,t)=outflow\_4[k=12];  
EQUATION d(escaped\_5,t)=outflow\_5[k=12];  
EQUATION d(escaped\_6,t)=outflow\_6[k=12];  
EQUATION d(escaped\_7,t)=outflow\_7[k=12];  
EQUATION d(escaped\_8,t)=outflow\_8[k=12];  
EQUATION d(escaped\_9,t)=outflow\_9[k=12];  
EQUATION d(escaped\_10,t)=outflow\_10[k=12];  
EQUATION d(escaped\_11,t)=outflow\_11[k=12];  
EQUATION d(escaped\_12,t)=outflow\_12[k=12];

EQUATION d(farfield\_1,t)=-Pu240lambda\*farfield\_1+outflow\_1[k=12];  
EQUATION d(farfield\_2,t)=-U236lambda\*farfield\_2+Pu240lambda\*farfield\_1+outflow\_2[k=12];  
EQUATION d(farfield\_3,t)=-Th232lambda\*farfield\_3+U236lambda\*farfield\_2+outflow\_3[k=12];  
EQUATION d(farfield\_4,t)=-Am241lambda\*farfield\_4+outflow\_4[k=12];  
EQUATION d(farfield\_5,t)=-Np237lambda\*farfield\_5+Am241lambda\*farfield\_4+outflow\_5[k=12];  
EQUATION d(farfield\_6,t)=-U233lambda\*farfield\_6+Np237lambda\*farfield\_5+outflow\_6[k=12];  
EQUATION d(farfield\_7,t)=-U238lambda\*farfield\_7+outflow\_7[k=12];  
EQUATION d(farfield\_8,t)=-U234lambda\*farfield\_8+U238lambda\*farfield\_7+outflow\_8[k=12];  
EQUATION d(farfield\_9,t)=-Th230lambda\*farfield\_9+U234lambda\*farfield\_8+outflow\_9[k=12];  
EQUATION d(farfield\_10,t)=-Am243lambda\*farfield\_10+outflow\_10[k=12];  
EQUATION d(farfield\_11,t)=-Pu239lambda\*farfield\_11+Am243lambda\*farfield\_10+outflow\_11[k=12];  
EQUATION d(farfield\_12,t)=-U235lambda\*farfield\_12+Pu239lambda\*farfield\_11+outflow\_12[k=12];

INITIAL massin\_1=0.0;  
INITIAL massin\_2=0.0;  
INITIAL massin\_3=0.0;  
INITIAL massin\_4=0.0;  
INITIAL massin\_5=0.0;  
INITIAL massin\_6=0.0;  
INITIAL massin\_7=0.0;  
INITIAL massin\_8=0.0;  
INITIAL massin\_9=0.0;  
INITIAL massin\_10=0.0;  
INITIAL massin\_11=0.0;  
INITIAL massin\_12=0.0;

WEIGHT massin\_1=1.0/(abs(massin\_1)+1.0e-10);  
WEIGHT massin\_2=1.0/(abs(massin\_2)+1.0e-10);  
WEIGHT massin\_3=1.0/(abs(massin\_3)+1.0e-10);  
WEIGHT massin\_4=1.0/(abs(massin\_4)+1.0e-10);  
WEIGHT massin\_5=1.0/(abs(massin\_5)+1.0e-10);  
WEIGHT massin\_6=1.0/(abs(massin\_6)+1.0e-10);  
WEIGHT massin\_7=1.0/(abs(massin\_7)+1.0e-10);  
WEIGHT massin\_8=1.0/(abs(massin\_8)+1.0e-10);  
WEIGHT massin\_9=1.0/(abs(massin\_9)+1.0e-10);  
WEIGHT massin\_10=1.0/(abs(massin\_10)+1.0e-10);  
WEIGHT massin\_11=1.0/(abs(massin\_11)+1.0e-10);  
WEIGHT massin\_12=1.0/(abs(massin\_12)+1.0e-10);

INITIAL escaped\_1=0.0;  
INITIAL escaped\_2=0.0;  
INITIAL escaped\_3=0.0;  
INITIAL escaped\_4=0.0;  
INITIAL escaped\_5=0.0;  
INITIAL escaped\_6=0.0;  
INITIAL escaped\_7=0.0;  
INITIAL escaped\_8=0.0;  
INITIAL escaped\_9=0.0;  
INITIAL escaped\_10=0.0;  
INITIAL escaped\_11=0.0;  
INITIAL escaped\_12=0.0;

WEIGHT escaped\_1=1.0/(abs(escaped\_1)+1.0e-10);  
WEIGHT escaped\_2=1.0/(abs(escaped\_2)+1.0e-10);  
WEIGHT escaped\_3=1.0/(abs(escaped\_3)+1.0e-10);  
WEIGHT escaped\_4=1.0/(abs(escaped\_4)+1.0e-10);  
WEIGHT escaped\_5=1.0/(abs(escaped\_5)+1.0e-10);  
WEIGHT escaped\_6=1.0/(abs(escaped\_6)+1.0e-10);  
WEIGHT escaped\_7=1.0/(abs(escaped\_7)+1.0e-10);  
WEIGHT escaped\_8=1.0/(abs(escaped\_8)+1.0e-10);  
WEIGHT escaped\_9=1.0/(abs(escaped\_9)+1.0e-10);  
WEIGHT escaped\_10=1.0/(abs(escaped\_10)+1.0e-10);  
WEIGHT escaped\_11=1.0/(abs(escaped\_11)+1.0e-10);  
WEIGHT escaped\_12=1.0/(abs(escaped\_12)+1.0e-10);

INITIAL farfield\_1=0.0;  
INITIAL farfield\_2=0.0;  
INITIAL farfield\_3=0.0;  
INITIAL farfield\_4=0.0;  
INITIAL farfield\_5=0.0;  
INITIAL farfield\_6=0.0;  
INITIAL farfield\_7=0.0;  
INITIAL farfield\_8=0.0;  
INITIAL farfield\_9=0.0;  
INITIAL farfield\_10=0.0;  
INITIAL farfield\_11=0.0;  
INITIAL farfield\_12=0.0;

WEIGHT farfield\_1=1.0/(abs(farfield\_1)+1.0e-10);  
WEIGHT farfield\_2=1.0/(abs(farfield\_2)+1.0e-10);  
WEIGHT farfield\_3=1.0/(abs(farfield\_3)+1.0e-10);  
WEIGHT farfield\_4=1.0/(abs(farfield\_4)+1.0e-10);  
WEIGHT farfield\_5=1.0/(abs(farfield\_5)+1.0e-10);  
WEIGHT farfield\_6=1.0/(abs(farfield\_6)+1.0e-10);  
WEIGHT farfield\_7=1.0/(abs(farfield\_7)+1.0e-10);  
WEIGHT farfield\_8=1.0/(abs(farfield\_8)+1.0e-10);  
WEIGHT farfield\_9=1.0/(abs(farfield\_9)+1.0e-10);  
WEIGHT farfield\_10=1.0/(abs(farfield\_10)+1.0e-10);  
WEIGHT farfield\_11=1.0/(abs(farfield\_11)+1.0e-10);  
WEIGHT farfield\_12=1.0/(abs(farfield\_12)+1.0e-10);

MONITOR peak\_flux\_1=max(peak\_flux\_1,outflow\_1);  
MONITOR peak\_flux\_2=max(peak\_flux\_2,outflow\_2);  
MONITOR peak\_flux\_3=max(peak\_flux\_3,outflow\_3);  
MONITOR peak\_flux\_4=max(peak\_flux\_4,outflow\_4);  
MONITOR peak\_flux\_5=max(peak\_flux\_5,outflow\_5);  
MONITOR peak\_flux\_6=max(peak\_flux\_6,outflow\_6);  
MONITOR peak\_flux\_7=max(peak\_flux\_7,outflow\_7);  
MONITOR peak\_flux\_8=max(peak\_flux\_8,outflow\_8);  
MONITOR peak\_flux\_9=max(peak\_flux\_9,outflow\_9);  
MONITOR peak\_flux\_10=max(peak\_flux\_10,outflow\_10);  
MONITOR peak\_flux\_11=max(peak\_flux\_11,outflow\_11);  
MONITOR peak\_flux\_12=max(peak\_flux\_12,outflow\_12);

INITIAL peak\_flux\_1=0.0;  
INITIAL peak\_flux\_2=0.0;  
INITIAL peak\_flux\_3=0.0;  
INITIAL peak\_flux\_4=0.0;  
INITIAL peak\_flux\_5=0.0;  
INITIAL peak\_flux\_6=0.0;  
INITIAL peak\_flux\_7=0.0;  
INITIAL peak\_flux\_8=0.0;  
INITIAL peak\_flux\_9=0.0;  
INITIAL peak\_flux\_10=0.0;  
INITIAL peak\_flux\_11=0.0;  
INITIAL peak\_flux\_12=0.0;

MONITOR peak\_farfield\_1=max(peak\_farfield\_1,farfield\_1);  
MONITOR peak\_farfield\_2=max(peak\_farfield\_2,farfield\_2);



MONITOR peak\_farfield\_3=max(peak\_farfield\_3, farfield\_3);  
MONITOR peak\_farfield\_4=max(peak\_farfield\_4, farfield\_4);  
MONITOR peak\_farfield\_5=max(peak\_farfield\_5, farfield\_5);  
MONITOR peak\_farfield\_6=max(peak\_farfield\_6, farfield\_6);  
MONITOR peak\_farfield\_7=max(peak\_farfield\_7, farfield\_7);  
MONITOR peak\_farfield\_8=max(peak\_farfield\_8, farfield\_8);  
MONITOR peak\_farfield\_9=max(peak\_farfield\_9, farfield\_9);  
MONITOR peak\_farfield\_10=max(peak\_farfield\_10, farfield\_10);  
MONITOR peak\_farfield\_11=max(peak\_farfield\_11, farfield\_11);  
MONITOR peak\_farfield\_12=max(peak\_farfield\_12, farfield\_12);

INITIAL peak\_farfield\_1=0.0;  
INITIAL peak\_farfield\_2=0.0;  
INITIAL peak\_farfield\_3=0.0;  
INITIAL peak\_farfield\_4=0.0;  
INITIAL peak\_farfield\_5=0.0;  
INITIAL peak\_farfield\_6=0.0;  
INITIAL peak\_farfield\_7=0.0;  
INITIAL peak\_farfield\_8=0.0;  
INITIAL peak\_farfield\_9=0.0;  
INITIAL peak\_farfield\_10=0.0;  
INITIAL peak\_farfield\_11=0.0;  
INITIAL peak\_farfield\_12=0.0;

SIDE totalm\_1=m\_1\_1[k=0]+m\_1\_1[k=1]+m\_1\_1[k=2]+m\_1\_1[k=3]+m\_1\_1[k=4]+m\_1\_1[k=5]+m\_1\_1[k=6];  
SIDE totalm\_2=m\_2\_1[k=0]+m\_2\_1[k=1]+m\_2\_1[k=2]+m\_2\_1[k=3]+m\_2\_1[k=4]+m\_2\_1[k=5]+m\_2\_1[k=6];  
SIDE totalm\_3=m\_3\_1[k=0]+m\_3\_1[k=1]+m\_3\_1[k=2]+m\_3\_1[k=3]+m\_3\_1[k=4]+m\_3\_1[k=5]+m\_3\_1[k=6];  
SIDE totalm\_4=m\_4\_1[k=0]+m\_4\_1[k=1]+m\_4\_1[k=2]+m\_4\_1[k=3]+m\_4\_1[k=4]+m\_4\_1[k=5]+m\_4\_1[k=6];  
SIDE totalm\_5=m\_5\_1[k=0]+m\_5\_1[k=1]+m\_5\_1[k=2]+m\_5\_1[k=3]+m\_5\_1[k=4]+m\_5\_1[k=5]+m\_5\_1[k=6];  
SIDE totalm\_6=m\_6\_1[k=0]+m\_6\_1[k=1]+m\_6\_1[k=2]+m\_6\_1[k=3]+m\_6\_1[k=4]+m\_6\_1[k=5]+m\_6\_1[k=6];  
SIDE totalm\_7=m\_7\_1[k=0]+m\_7\_1[k=1]+m\_7\_1[k=2]+m\_7\_1[k=3]+m\_7\_1[k=4]+m\_7\_1[k=5]+m\_7\_1[k=6];  
SIDE totalm\_8=m\_8\_1[k=0]+m\_8\_1[k=1]+m\_8\_1[k=2]+m\_8\_1[k=3]+m\_8\_1[k=4]+m\_8\_1[k=5]+m\_8\_1[k=6];  
SIDE totalm\_9=m\_9\_1[k=0]+m\_9\_1[k=1]+m\_9\_1[k=2]+m\_9\_1[k=3]+m\_9\_1[k=4]+m\_9\_1[k=5]+m\_9\_1[k=6];  
SIDE totalm\_10=m\_10\_1[k=0]+m\_10\_1[k=1]+m\_10\_1[k=2]+m\_10\_1[k=3]+m\_10\_1[k=4]+m\_10\_1[k=5]+m\_10\_1[k=6];  
SIDE totalm\_11=m\_11\_1[k=0]+m\_11\_1[k=1]+m\_11\_1[k=2]+m\_11\_1[k=3]+m\_11\_1[k=4]+m\_11\_1[k=5]+m\_11\_1[k=6];  
SIDE totalm\_12=m\_12\_1[k=0]+m\_12\_1[k=1]+m\_12\_1[k=2]+m\_12\_1[k=3]+m\_12\_1[k=4]+m\_12\_1[k=5]+m\_12\_1[k=6];

SIDE Total\_mass\_in=massin\_1+massin\_2+massin\_3+massin\_4+massin\_5+massin\_6+massin\_7+massin\_8;

SIDE Total\_mass=m\_1\_1[k=0]+m\_1\_1[k=1]+m\_1\_1[k=2]+m\_1\_1[k=3]+m\_1\_1[k=4]+m\_1\_1[k=5]+m\_1\_1[k=6];

## 付録ー2 WASPのインストール及び実行方法

## 1. WASPのインストール

WASP (Writer of Automated SPade files) は、SPADEオリジナルの限定的なシンタックスを補い、本文で述べた様な複雑な核種移行解析を簡易かつ体系的に定式化するとともに対応する.spfファイルを自動的に作成する機能を有するCプログラムである。本プログラムのユーザーとしては、SPADEオリジナルの、即ち.spfファイルに関するシンタックスについて必要最低限の（簡単な問題を定式化できる）知識があることが望ましいが、これは必ずしも必須ではない。なお、WASPで用いるコマンドについては本文3.章を参照されたい。

WASP のアプリケーションは、別添のディスク内のwasp\_v1.tar ファイルに収められており、次のUNIXコマンドによりアンパッケージされる。

```
% tar xvf wasp_v1.tar
```

このコマンドによりWASP\_V1というディレクトリー及びsrc、bin等のサブディレクトリーが作成される。これらのうちサブディレクトリーbinの中にはsetupと名付けられたファイルがあり、まずこのファイルを編集することによりWASP\_V1ディレクトリーに対応した環境変数\$WASP が定義されると共に、SPADEのエクセキュータブルのホームディレクトリーを\$SPADEと設定することが必要である。次に、

```
% source setup
```

というコマンドをタイプインした後

```
% makeexec
```

とタイプすることによりWASPのエクセキュータブルが作成される。この状態で、binの中にwasp が実行可能な状態で存在することとなる。

## 2. 実行

WASPは.prespfファイルから.spfファイルを作成するプログラムである。例えば、サ

ブディレクトリーetc に含まれている.prespfファイル（仮にx.prespfとする）を.spfファイルに変換するには、まず、

```
% wasp
```

というコマンドを入力すると、ユーザーは対応する.prespfファイルを指定することを求められる。そこで、x あるいは x.prespf と入力すると、WASPはx.spf 及びx.key という二つのファイルを作成する。代替的な手順としては、初めから

```
% wasp x
```

あるいは

```
% wasp x.prespf
```

と入力することによっても上と同じ結果が得られる。

こうして作成された.spfファイルを用いてSPADEの計算を実行するには、

```
% spade x > x.log
```

とタイプすれば良い。

### 3. プリプロセッシング及びポストプロセッシング

WASP の最も強力な機能は、多数回の統計的なサンプリングに基づく感度解析を実施可能な点である。この目的のために、WASPに付随してCシェルスクリプトが用意されている。このスクリプトを用いるには、まず、

```
% makeexec wasp rand
```

というコマンドに続いて

```
% scenarios -h
```

というコマンドをタイプする。

この操作により、統計計算モードのスクリプトscenariosに切り替わり、src 中の randsims.cファイルにより、etcに含まれている統計計算のためのテンプレート.prespf 中の指定された定数に統計的にサンプリングされたランダムな値が割り付けられることとなる。scenarios は自動的に各ケースの.lisファイルを圧縮して収納したlisdata というディレクトリーを作成する。また、これに加えて、乱数のシード及びSPADEのランタイムスタティスティックスを記録したscenarios.log 及び乱数の値、ピークフラックス及びピーク到達時刻を記録したscenarios.dat という二つのディレクトリーを作成する。

ポストプロセッシングは、extractというコマンドを用いて行われる。このコマンドは任意の.lisファイルから計算結果のうち必要な個所を抽出してファイルを作成するものである。例えば、1 2個の同位体、5個の元素、2個の瞬時平衡グループ、3個の化学形態及び1 3個の空間メッシュを対象としたx.spf という.spfファイルによりSPADEの計算を実行したとする。この場合、

```
% extract x.lis 12 5 2 3 13
```

というコマンドにより全ての計算結果が.lis から抽出される。また、

```
% extract x.lis 12 5 2 3 13 c
```

というコマンドにより全ての濃度算出結果が抽出される。その他、ユーザーは必要な情報に対応するキーをSPADE実行時に自動的に作成されるx.keyファイルを参照しながら適宜データの抽出を上と同じ要領で行うことが可能である。また、上述した統計モードの解析結果についてはextraxct-scenarioコマンドによりデータの抽出を行うことができる。例えば、1番目のケースについて全ての計算結果を抜き出す場合には

```
% extract-scenario 1 12 5 2 3 13
```

とタイプすれば良い。

付録一3  
回帰分析用 *MATHEMATICA* ファイルの例

以下は、AmというNケースの計算結果から成るファイル（各ケースにつき最初の4個の数值は対応するシャドウパラメータの値、5番目は最大核種放出率の値）を例として、

- 1) 線形ステップワイズ回帰分析
- 2) ランク変換
- 3) ランクステップワイズ回帰分析

を実施する、それぞれ独立したMATHEMATICAファイルである。個々の計算内容についてはコメント文を参照されたい。

"Am is a file containing results of N calculational/cases. Each row consists of 5 entries; first 4 are/ the input shadow parameters and the last one corre/ -sponds to the peak Am flux. The following file des/ -cribes the procedure of linear stepwise regression."

"Step1; Find the first parameter with the strongest correlation to the peak flux and best linear regression model.

r[j] is square residual error function with regard to the jth parameter."

```
r[j_]:=
Sqrt[Sum[(Am[[i]][[5]]-p-q Am[[i]][[j]])^2,{i,N}]]
Table[amreg[j]=FindMinimum[r[j],{p,0},{q,0}],{j,4}]
{{34.2765, {p -> 1.24592, q -> 2.78513}},
 {60.4818, {p -> -11.5277, q -> 2.1689}},
 {60.1288, {p -> -9.12877, q -> 0.292625}},
 {60.8176, {p -> -11.1572, q -> 0.0141514}}}
```

"Step2; Find the second parameter with the strongest correlation to the peak flux and best linear regression model. (Note the first parameter has been fixed.)

rr[j] is square residual error function with regard to the jth parameter."

```
rr[j_]:=
Sqrt[Sum[(Am[[i]][[5]]-p-q Am[[i]][[1]]-
qq Am[[i]][[j]])^2,{i,N}]]
Table[
amrreg[j]=FindMinimum[rr[j],{p,1.246},{q,2.785},
{qq,0}],{j,2,4}]
{{33.3462, {p -> 0.246166, q -> 2.79165, qq -> 2.04558}},
 {31.0222, {p -> 3.32388, q -> 2.84791, qq -> 0.407014}},
 {34.0434, {p -> 0.71111, q -> 2.77133, qq -> 0.00972626}}}
```

"Step3; Find the third parameter with the strongest correlation to the peak flux and best linear regression model. (Note the first 2 parameters have been fixed.)

rrr[j] is square residual error function with regard to the jth parameter."

```
rrr[j_]:=
Sqrt[Sum[(Am[[i]][[5]]-p-q Am[[i]][[1]]-
qq Am[[i]][[3]]-qqq Am[[i]][[j]])^2,{i,N}]]
```



```

amrrreg[2]=FindMinimum[rrr[2], {p, 3.323}, {q, 2.848},
                        {qq, 0.407}, {qqq, 0}]
{29.5442, {p -> 2.19455, q -> 2.85047, qq -> 0.434105,
          qqq -> 2.50082}}

amrrreg[4]=FindMinimum[rrr[4], {p, 3.323}, {q, 2.848},
                        {qq, 0.407}, {qqq, 0}]
{30.8912, {p -> 2.88459, q -> 2.84443, qq -> 0.400845,
          qqq -> 0.00774932}}

"Step4; Find the fourth parameter with the strongest
correlation to the peak flux and best linear
regression model. (Note the first 3 parameters
have been fixed.)
rrrr[j] is square residual error function with
regard to the jth parameter."

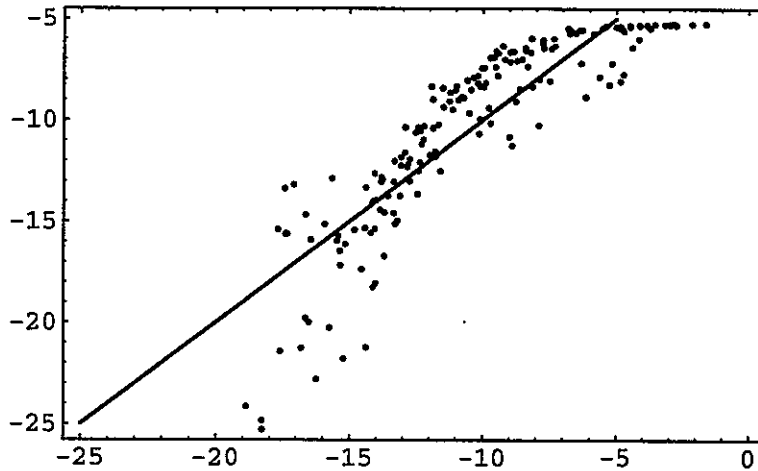
rrrr=
Sqrt[Sum[(Am[[i]][[5]]-p-q Am[[i]][[1]]-
          qq Am[[i]][[3]]-qqq Am[[i]][[2]]-
          qqqq Am[[i]][[4]])^2, {i, 172}]];
amrrrreg=
FindMinimum[rrrr, {p, 2.195}, {q, 2.85}, {qq, 0.434},
            {qqq, 2.5}, {qqqq, 0},
            MaxIterations->100]

{29.3831, {p -> 1.83546, q -> 2.85539, qq -> 0.42913,
          qqq -> 2.37326, qqqq -> 0.00828326}}

```

"Draw scatter plot using the final regression model."

```
amddd=Table[{p+q Am[[i]][[1]]+qq Am[[i]][[3]]+
             qq Am[[i]][[2]]+qqq Am[[i]][[4]]/.
             amrrreg[[2]],
             Am[[i]][[5]]}, {i, 172}];
famddd=ListPlot[amddd, Frame->True];
hh=Plot[x, {x, -25, -5}];
Show[famddd, hh]
```



-Graphics-

"Calculate the correlation factor."

```
mAm=Sum[Am[[i]][[5]], {i, 172}]/172;
vAm=Sum[(Am[[i]][[5]]-mAm)^2, {i, 172}];
1-29.38^2/vAm
0.768338
```

"Transform the file Am, which contains results of N / calculations. Each row consists of 5 entries; the / first four are the input shadow parameters and the / last corresponds to the peak flux, and generate co/ -rresponding rank data file. The following command/ replaces the fifth entry (absolute value of the pe/ -ak flux foe each case) to the rank and rename the/ new file as Ram."

```
Ram=  
Table[  
  Table[  
    Position[  
      Sort[Table[Am[[i]][[k]],  
        {i,N}],  
      Am[[j]][[k]][[1]][[1]],  
      {k,5}],  
    {j,N}];
```

"The following procedure executes stepwise rank regression for Ram file (see the file 'rank transform' for detail). The calculational scheme is exactly the same as that for linear stepwise regression."

"Step1"

```
r[j_]:=
Sqrt[Sum[(Ram[[i]][[5]]-p-q Ram[[i]][[j]])^2,{i,N}]]
Table[amreg[j]=FindMinimum[r[j],{p,0},{q,0}],{j,4}]
{{311.174, {p -> 10.5157, q -> 0.878431}},
 {645.309, {p -> 74.9202, q -> 0.13387}},
 {634.217, {p -> 66.8903, q -> 0.226702}},
 {648.375, {p -> 78.4937, q -> 0.0925587}}}
```

"Step2"

```
rr[j_]:=
Sqrt[Sum[(Ram[[i]][[5]]-p-q Ram[[i]][[1]]-
qq Ram[[i]][[j]])^2,{i,N}]]
Table[
amrreg[j]=FindMinimum[rr[j],{p,10.52},{q,0.878},
{qq,0}],{j,2,4}]
{{300.505, {p -> -0.616699, q -> 0.879668, qq -> 0.12658}},
 {241.546, {p -> -17.9198, q -> 0.904212,
qq -> 0.302803}}, {307.832,
{p -> 3.99417, q -> 0.879754, qq -> 0.0729777}}}
```

"Step3"

```
rrr[j_]:=
Sqrt[Sum[(Ram[[i]][[5]]-p-q Ram[[i]][[1]]-
qq Ram[[i]][[3]]-qqq Ram[[i]][[j]])^2,{i,N}]]
amrrreg[2]=FindMinimum[rrr[2],{p,-17.92},{q,0.904},
{qq,0.303},{qqq,0}]
{219.231, {p -> -32.7546, q -> 0.903625, qq -> 0.318399,
qqq -> 0.156678}}
amrrreg[4]=FindMinimum[rrr[4],{p,-17.92},{q,0.904},
{qq,0.303},{qqq,0}]
{240.065, {p -> -17.9205, q -> 0.889252, qq -> 0.286047,
qqq -> 0.0358803}}}
```

"Step 4"

```

rrrr=
Sqrt[Sum[(Ram[[i]][[5]]-p-q Ram[[i]][[1]]-
qq Ram[[i]][[3]]-qqq Ram[[i]][[2]]-
qqqq Ram[[i]][[4]])^2,{i,N}]];
amrrrreg=
FindMinimum[rrrr, {p, -32.7546}, {q, 0.903625},
{qq, 0.318399}, {qqq, 0.156678},
{qqqq, 0},
MaxIterations->100]

```

```

{217.076, {p -> -32.755, q -> 0.890553, qq -> 0.302552,
qqq -> 0.146443, qqqq -> 0.0426073}}

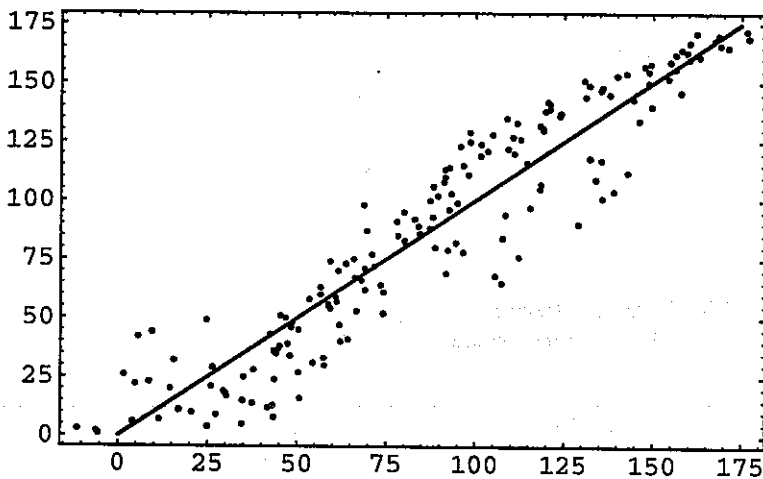
```

"Draw scatter plot"

```

amdddd=Table[{p+q Ram[[i]][[1]]+qq Ram[[i]][[3]]+
qqq Ram[[i]][[2]]+qqqq Ram[[i]][[4]]/.
amrrrreg[[2]],
Ram[[i]][[5]], {i,N}];
famdddd=ListPlot[amdddd, Frame->True];
hh=Plot[x, {x, 0, 175}];
Show[famdddd, hh]

```



-Graphics-

"Calculate correlation factor."

```

mRam=Sum[Ram[[i]][[5]], {i, 172}]/172;
vRam=Sum[(Ram[[i]][[5]]-mRam)^2, {i, 172}];
1-217.1^2/vRam

```

0.888845

付録-4  
SVDによるパターン認識用  
*MATHEMATICA* ファイルの例

以下のMATHEMATICAファイルは、統計的サンプリングに対応して実施した多数の解析結果のうちある一つのクラスターに属するものに関してSVD (Singular Value Decomposition) を実施した例である。このプログラムは、

- 1) 解析結果全体のファイルから当該クラスターに属するケース群を抽出する。
- 2) 抽出されたケース群のシャドウパラメータ値の平均を採る。
- 3) 上記平均と個別のシャドウモデルとの差を採りdifference vectorsを作成する。
- 4) difference vectors から成る行列を作り、これに対してSVDにより主軸 (principal component) を算出する。
- 5) パラメータ空間内で、算出された主軸に沿って最も離れた位置にある二つのケースの間を内挿することによって複数のシャドウモデルを描画し、当該クラスターの共通的な特徴を示す。

という5つの作業を実行する。

"This piece of programme conducts principal component/ analyses for each cluster of shadow model simulation/ -s by using SVD technique. In addition, it makes a s/ -eries of figures of shadow models (casper) to high/ -light the common feature of cases belonging to a cl/ -uster."

"Set shadow function of an ellipse."

```
F[xxx_,y_,m_,n_,a_,b_,theta_]=
If[(Cos[theta](xxx-m)-Sin[theta](y-n))^2/a^2+
(Sin[theta](xxx-m)+Cos[theta](y-n))^2/b^2-1<0,1,0];
```

"Extract cases whose peak flux lie between npth1 and / npth2 out of the file called pnp."

```
npth1=-5;
npth2=-2;
h=1;
top=Flatten[Position[N[pnp],x_/;npth2>x>npth1]];
ltop=Length[top];
Print[ltop];
```

"Do SVD analysis for the cluster."

```
o=1;
ww=Part[casper,top];
wmean=Sum[ww[[i]],{i,ltop}]/ltop;
x=Table[ww[[j]]-wmean,{j,ltop}];
a=Transpose[x].x;
l=Eigenvalues[a];
v=Eigenvectors[a];
```

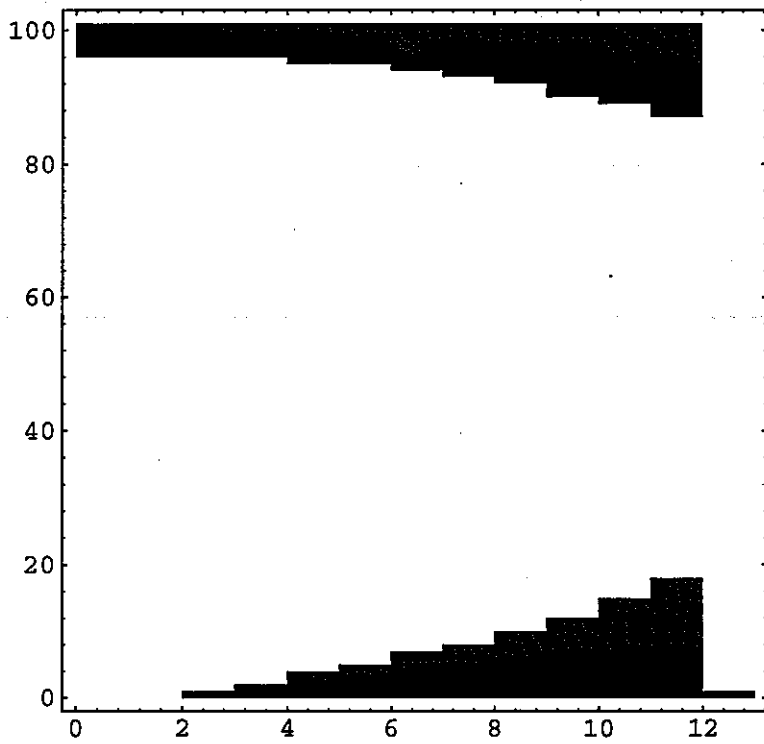
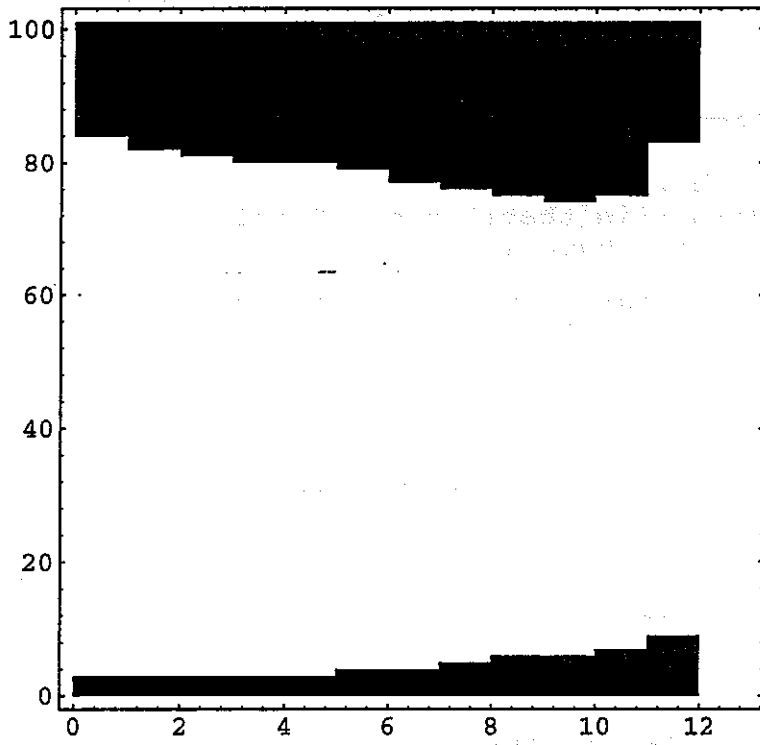
"Generate graphs along the first component."

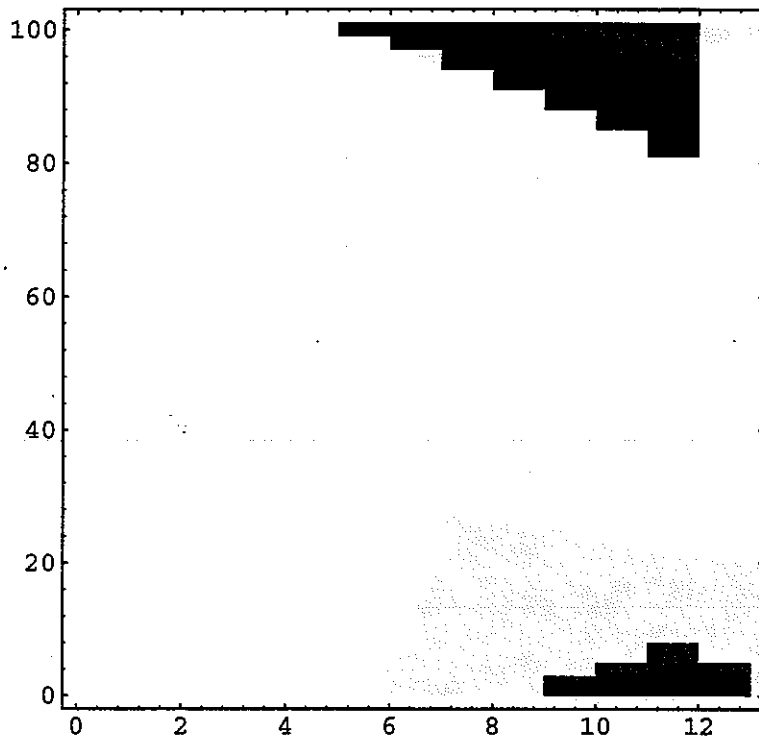
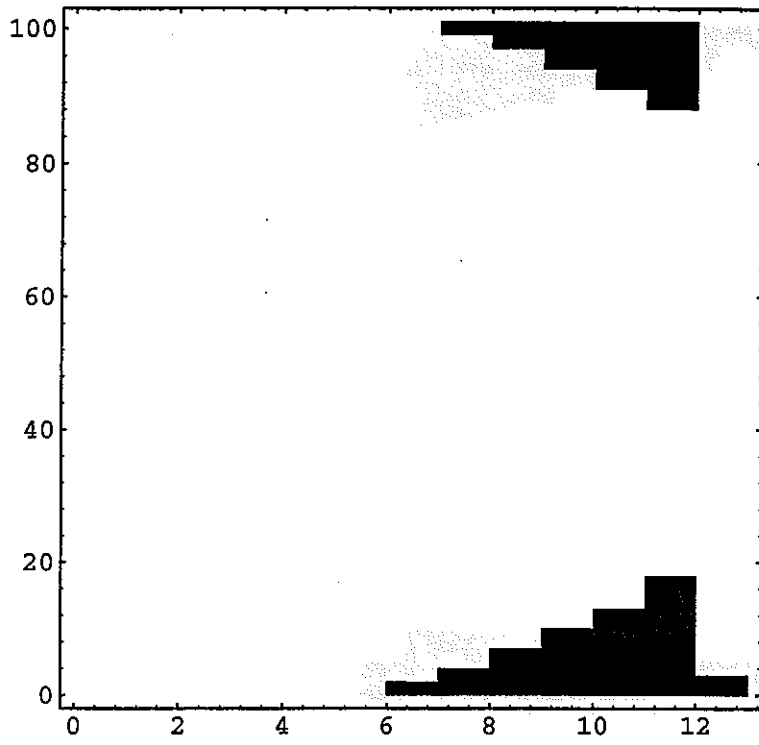
```
grid={0.1,0.35,0.55,0.65,0.75,0.85,0.95,1.05,1.15,
1.25,1.35,1.45,2.25}/3;
```

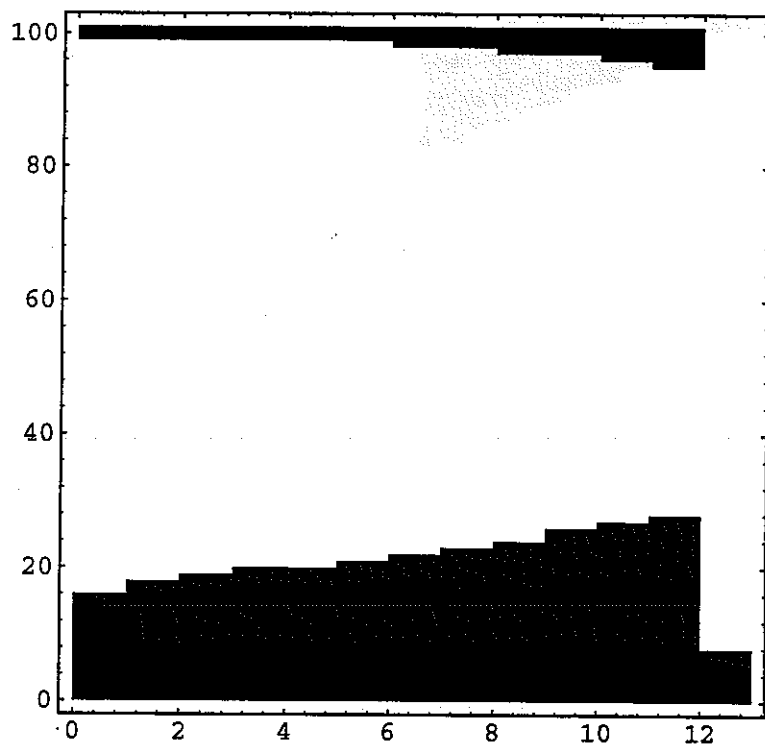
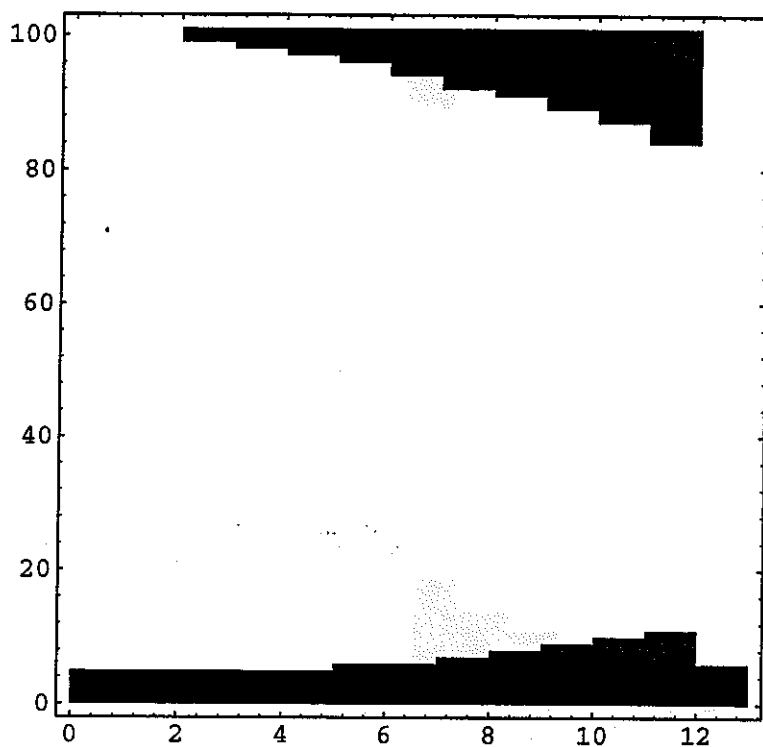
```
inf=Min[Table[v[[h]].x[[i]],{i,ltop}]];
sup=Max[Table[v[[h]].x[[i]],{i,ltop}]];
Print[sup];
Print[inf];
Table[
H=wmean+((1-j)*inf+j*sup)v[[h]];
tnt=
Table[
Min[1,F[grid[[j]],i,0,H[[1]],H[[5]],H[[7]],H[[3]]]+
F[grid[[j]],i,1,H[[2]],H[[6]],H[[8]],H[[4]]],
{i,0,1,0.01},{j,13}];
ListDensityPlot[tnt,Mesh->False,
{j,0,1,0.2}]
```



96  
1.03547  
-0.96461







{-DensityGraphics-, -DensityGraphics-, -DensityGraphics-,  
-DensityGraphics-, -DensityGraphics-, -DensityGraphics-}

## 付録一5

### 既往のシステム性能評価における 不確実性解析の事例 (NIREX 95)

## NIREX95: A preliminary analysis of the groundwater pathway for a deep repository at Sellafield (Nirex Report S/95/012) における不確実性解析の概要

Nirex は、最新の報告書であるNIREX95において、決定論的な解析に加えて確率論的解析及び感度解析を含めた包括的な予備的性能評価をSellafieldサイトに関して実施している。本資料は、この性能評価のうち、不確実性解析に関する部分に焦点を当てて、その概要をまとめたものである。なお、出典は、NIREX95を構成する3巻の報告書即ち「Volume 1 水理地質に関する概念モデルの作成」、「Volume 2 当該地域のモデリングに用いる実効的な水理地質パラメータ値の導出」、及び「Volume 3 リスクの算出」である。

ここで述べる種々の解析は、NAMMU, NAPSAC, あるいはMASCOT のうちいずれかの解析コードを用いて実施されたものである。NAMMU は有限要素法による流れ及び物質移動解析コードであり、NAPSAC及びMASCOTは、それぞれ亀裂ネットワークモデルならびに確率論的なネットワークモデルである。

### 1. サイトの概要

当該サイトは、Sellafieldから数キロメートル内陸側に位置する火山岩を基盤として、その上部にある石炭紀及びペルムー三畳紀の堆積岩によって構成される地層である。これらのうち火山岩部分は、Borrowdale Volcanic Group (BVG) と呼ばれており、処分場母岩の候補と考えられている。また、処分場の立地において候補と考えられる領域 (Potential Repository Zone, PRZ) では、BVGの上面は地下400mに位置している。図1にSellafield地域の地質構造を模式的に示す。

### 2. 性能評価に含まれる不確実性因子

以下に、本報告書本文 (4.1) における分類に即して、NIREX95に関して同定された各不確実性因子の概要をまとめる。

Schematic geological WSW-ENE cross-section X-Y through the Sellafield site.  
(see Figure 4.1 for location)

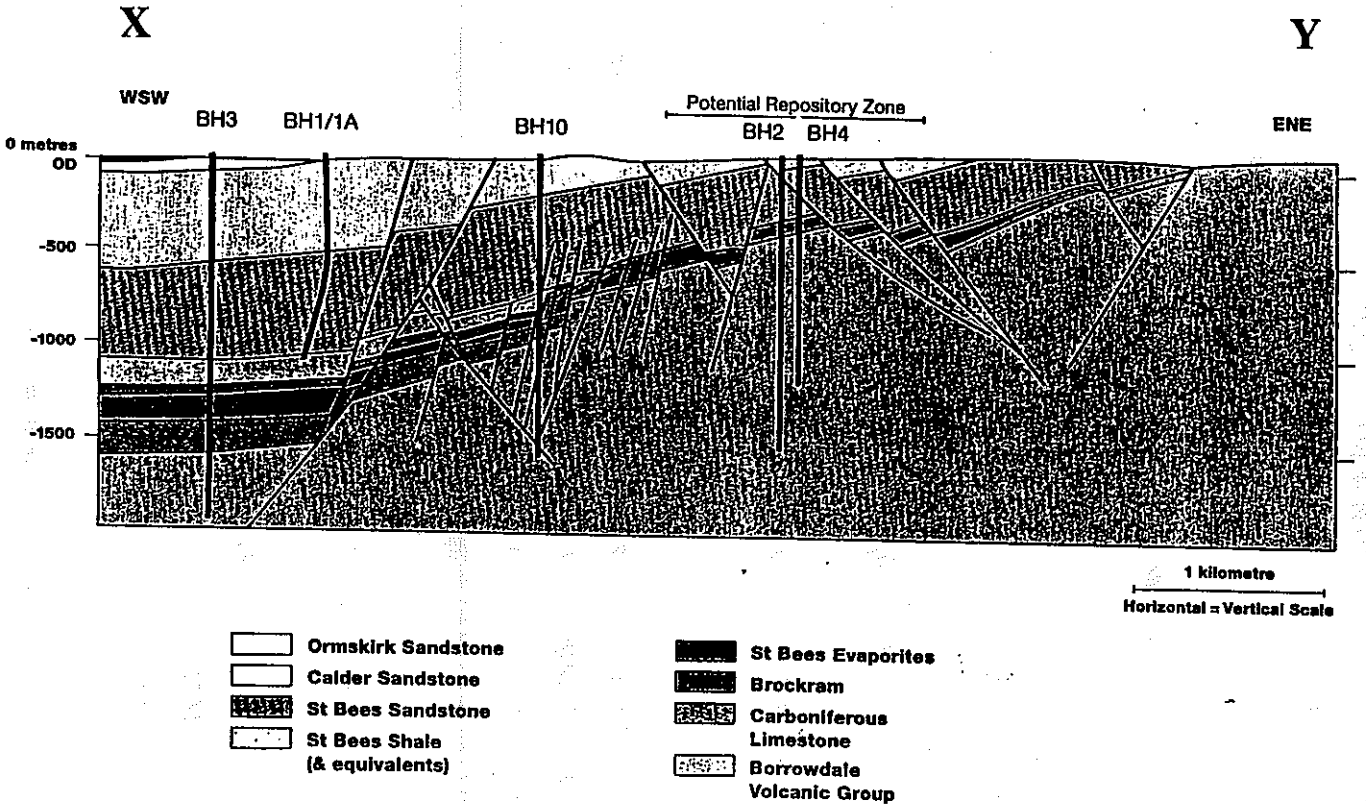


図1 Sellafield サイト WSW-ENE断面における地質構造の模式図

## 2.1 概念モデル不確実性

水理地質の概念モデル及び関連するデータセットの作成は、地質、水理地質、地球化学、及び地下水流動モデリングの各分野の専門家から成るエキスパートグループによって行われた。作成された概念モデルは14個の地質単位から成る複雑なものであるが、これに対して地下水流れそのものは各地質単位の中でのチャンネルに支配された密度効果を受けた流れという比較的単純なものが採用された。この概念モデル自体は、試錐孔データ及び他の類似したサイトでの経験を踏まえて採用されたものである。

各地下水移行経路は、その特徴に応じて以下の用に4種類に分類された（図2参照）。

Type0 岩体マトリクス中のチャンネル及び結晶粒界の空隙

TypeI 水理学的に有意な亀裂

TypeII 複数の亀裂のつながり

TypeIII 主要な破碎帯に付随する亀裂群

また、破碎帯が（充填鉱物等の存在のために）流れをむしろ阻害する様なケースは、変動ケースとして想定された。

水理地質モデリングに用いられるサイトの（非平面的な）二次元断面は、エキスパートグループの意見に基づき複数の主要な破碎帯を横断するものが選定された。この断面に直交する流れの成分は、変動ケースとして考えられることとなった。また、この概念モデルは、将来の反復的な評価の過程を通じて変遷するものであることが認識された。

以上の基本となる概念モデルに対して、

- 1) 水頭、及び塩分濃度に関する解析結果及び実測値の比較・照合
- 2) 主要な破碎帯の位置及び特性に関する不確実性の把握
- 3) 水理地質に対する複数の異なる表現方法

を調べることを目的として、代替的な水理地質概念モデルを用いた流れ及び塩分の移動についての変動ケースの解析が行われた。これらの種々の変動ケースにおける水理解析結果及び対応する実測データセットを図3にまとめる。ここでの主要な結論は、試錐孔での各

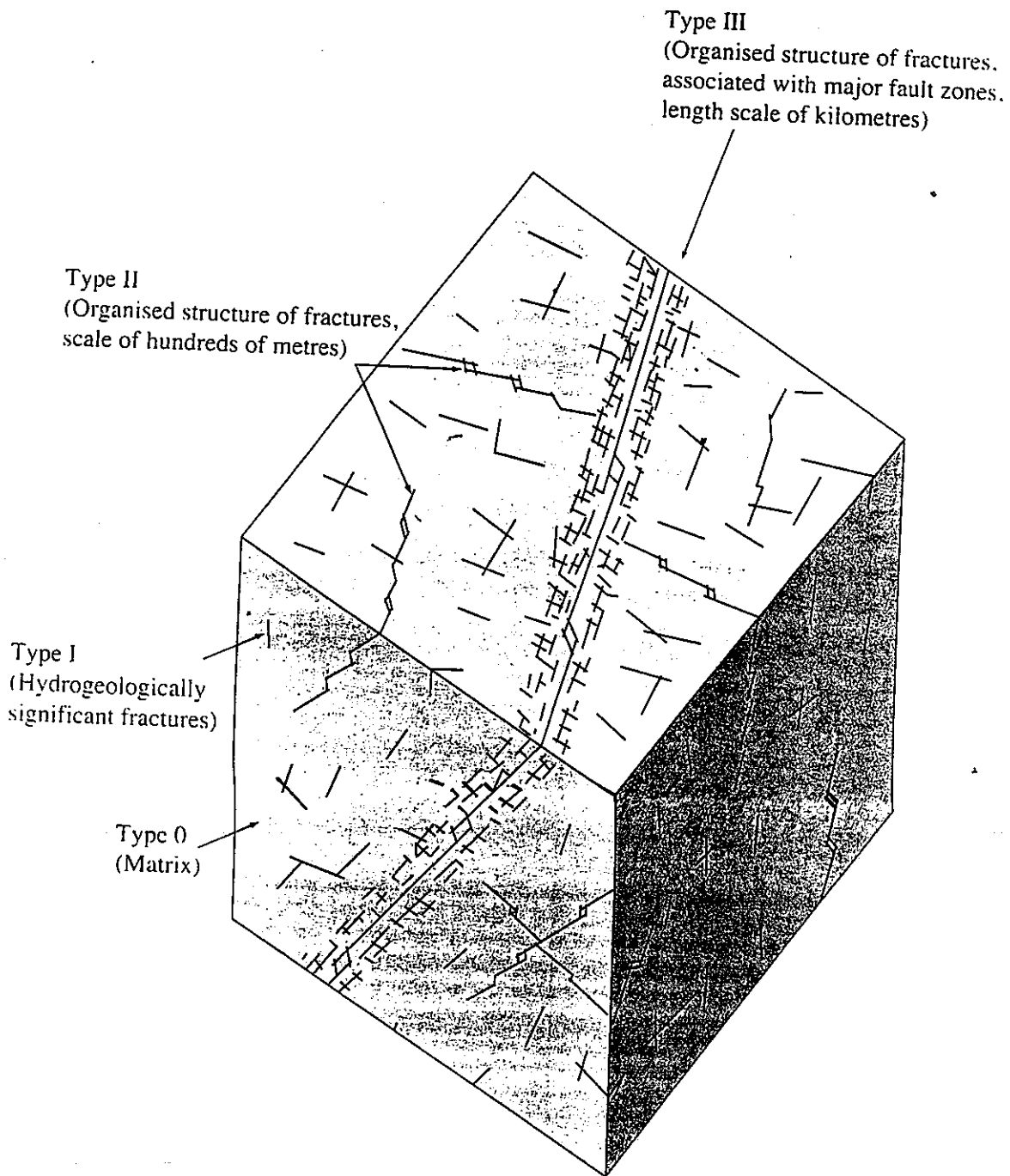


図2 水理地質概念モデルにおける亀裂の分類



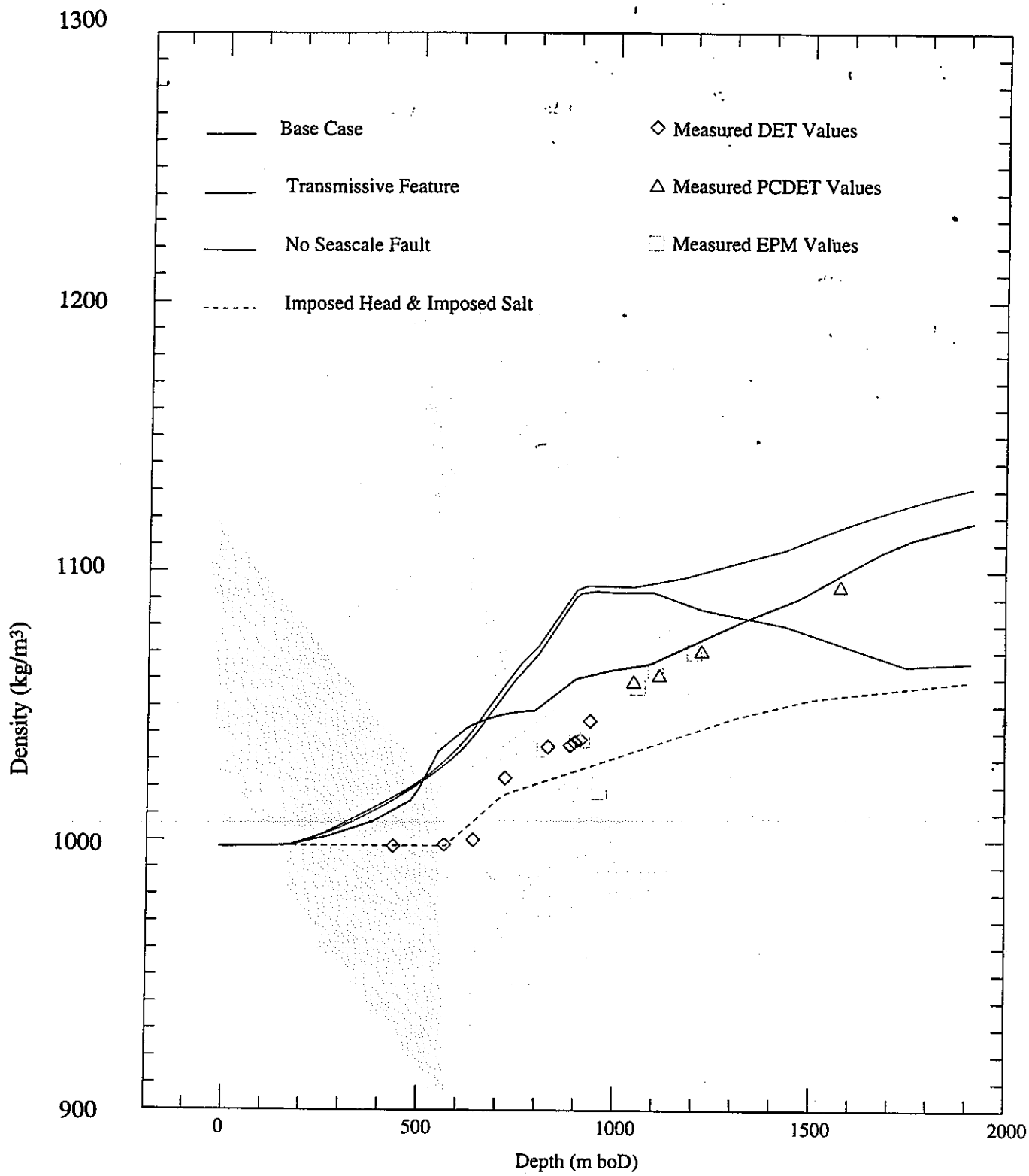


図3 試錐孔10Aの各深度における地下水比重に関する解析及び実測結果の比較

深度における測定結果を全て整合的に説明しきることのできる解析ケースは見いだされなかったということである。各変動ケースにおいてパラメータ値範囲の内中心値を用いた解析により得られた決定論的な（つまり、放射線学的な意味での）リスク\*の最大値を表1にまとめる。各変動ケースでの最大リスクの差異はファクター3の範囲内であることから、この水理地質概念モデルの不確実性に対する結果はある程度の安定性を持つものであると判断された。

なお、以上の解析においては、流れは全て定常状態であるものとし、水理学的な境界条件及びニアフィールドの化学的条件は時間に依存しないものであると仮定された。

#### \*訳注

本評価では、ICRPの勧告(Publication46)に従い、線量値は全て対応するリスクに換算されている。ここで言うリスクとは、ある線量の被ばくが生じた場合の人体への影響が放射線医学的な意味で統計的であることに対応しているものであり、後述する不確実性解析で被ばくの生起に関する種々の事象の発生確率に起因するリスクとは厳密に区別される。この意味から、NIREX95自体での標記に従い、以下、前者を決定論的なリスク、後者を単にリスクと呼ぶこととする。

## 2.2 サイト特性調査に付随する不確実性

サイト特性調査に付随する不確実性は、広範な調査にもかかわらず存在するものと考えられた。この種類の不確実性は、2.1に述べた水理地質概念モデルの代替案及び後述するパラメータ値の変動として取り扱われている。

## 2.3 パラメータ不確実性

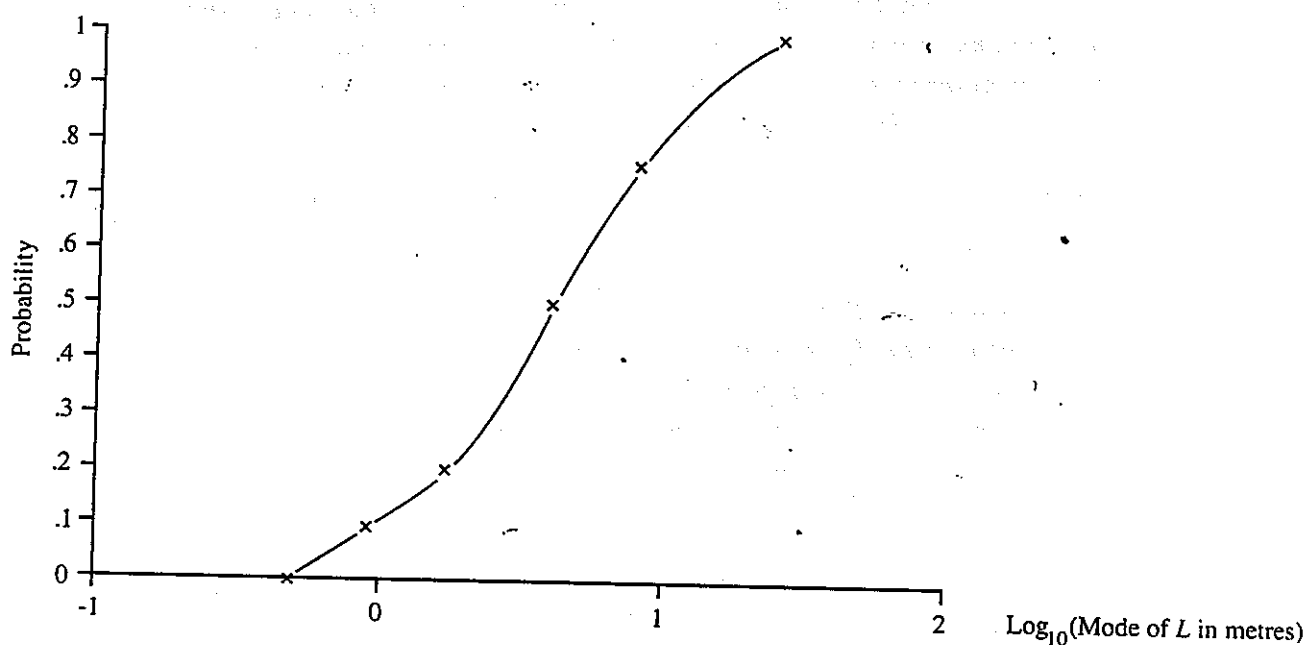
各概念モデルに対応して、「実効的なパラメータ値」（即ち各モデルで現実を近似する際の最適値）が設定された。より具体的には、専門家の意見としてパラメータ値の最大、最小及び最良推定値が与えられ、この3種類の情報に基づき各パラメータの確率分布が対数三角分布として設定された。

各タイプの亀裂に対して、まず、全地質単位共通に特性値（間隔、長さ、方向及び頻度）を確率密度関数として表現することが試みられた（例、図4）。これに対して、前出の地質単位を考慮して、単位毎に亀裂特性を付与した場合（図5）、それぞれの不確実性が減少することが確かめられ、この結果は、初めに述べた水理地質概念モデルにおける構

表1 ベースケースの水理地質概念モデル及び他の6種類の代替的な概念モデルにおける決定論的なリスクの最大値と最大値到達時刻（結果は、寒帯気候の内陸部への核種放出に対応している。）

Variant	Peak risk
Base case	1.89 $10^{-7}$ at 2.0 $10^4$ years
Transmissive Feature at Depth	5.52 $10^{-7}$ at 2.0 $10^3$ years
Flow within the Seascale Fault Zone	3.74 $10^{-7}$ at 6.4 $10^3$ years
Seascale Fault Zone not a Type III feature	4.93 $10^{-7}$ at 2.5 $10^3$ years
Reduced density of Type II features	1.18 $10^{-7}$ at 2.5 $10^4$ years
Basal Deep St Bees Sandstone a barrier to flow	1.58 $10^{-7}$ at 2.5 $10^4$ years
Imposed high heads, imposed salinity	5.57 $10^{-7}$ at 2.0 $10^3$ years

(a) Cumulative distribution function for mode of  $L$



(b) Possible range of distributions considered by the expert group

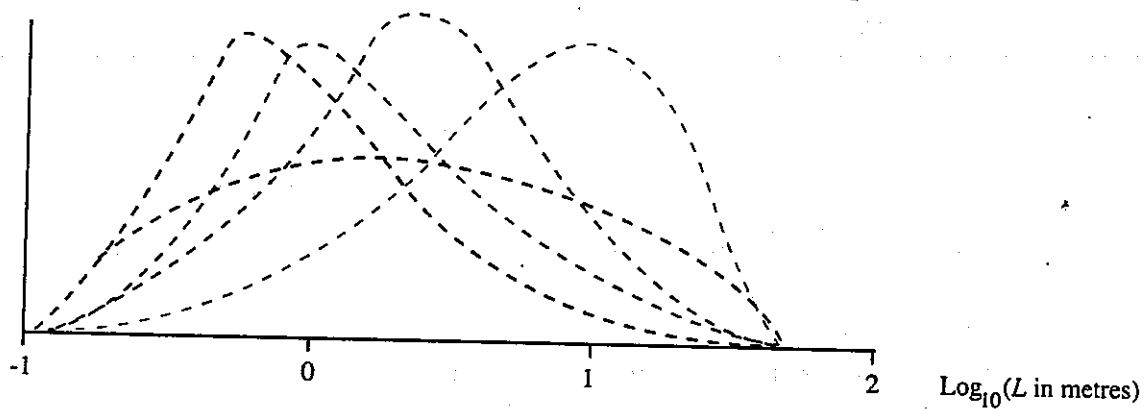


図4 BVG全体に定義されたパラメータ確率密度関数の例 (タイプ1 亀裂の長さ)

## 図5 各地質単位に対する亀裂特性の確率密度関数

The Figure shows the PDFs for the logarithm to base 10 of the effective regional permeabilities (measured in  $m^2$ ) for the various categories of flow channel for the different hydrogeological units.

For convenience, the PDFs are generally represented by triangular PDFs  $T(m-2s, m, m+2s)$  where  $m$  is the mean and  $s$  the standard deviation of the PDF to be presented. The PDFs shown only represent the uncertainty in each parameter considered in isolation, and do not represent any correlations between different parameters. However, such correlations were taken into account in the PSA calculations of risk.

The PDFs are labelled according to the category of flow channels that they represent:

- 0 denotes the Type 0 features (matrix);
- 1 denotes the Type I features (fractures);
- 2 denotes the Type II features;
- M denotes the major bedding plane features;
- L denotes the representative lattice;
- 3 denotes the Type III features.

The parameters for combinations of categories of flow channels are labelled accordingly.

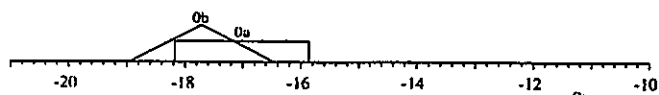
- a denotes the major principal component in cases in which there is anisotropy;
- b denotes the minor principal component in cases in which there is anisotropy.

The direction of the axis corresponding to 'a' is generally along the feature.

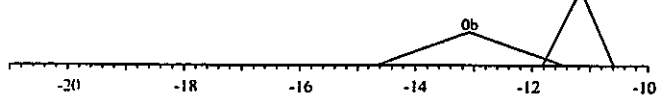
For convenience in comparison with reported experimental data from measurements on core samples and from EPMs, the Figure also shows a scale for the logarithm to base 10 of the permeability measured in milli-Darcy (mD), and a scale for the logarithm to base 10 of the corresponding hydraulic conductivity for freshwater at surface conditions. The conversion from a permeability  $k$  to the corresponding hydraulic conductivity  $K$  for freshwater at surface conditions is given by  $K = ck$ , where  $c = 10^7 m^{-1}s^{-1}$  to a good approximation.

Logarithm to base 10 of effective regional permeability ( $m^2$ )

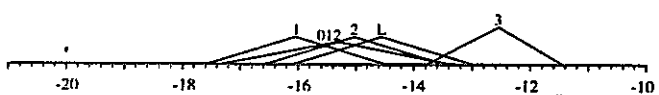
Marine Quaternary Deposits



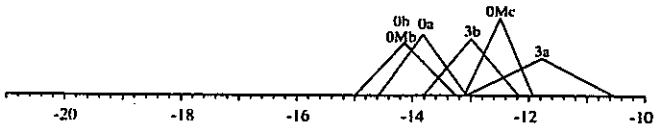
Terrestrial Quaternary Deposits



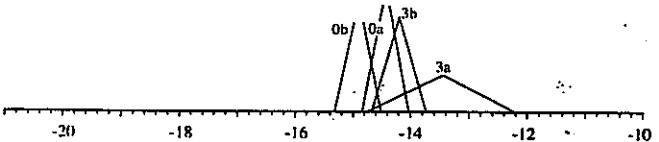
Mercia Mudstone



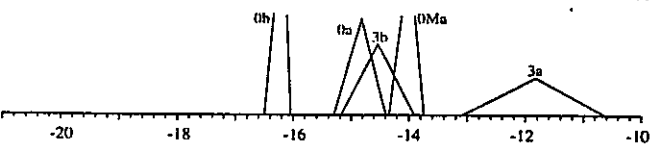
Near - Surface Calder Sandstone



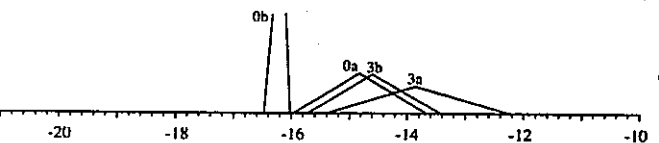
Deep Calder Sandstone



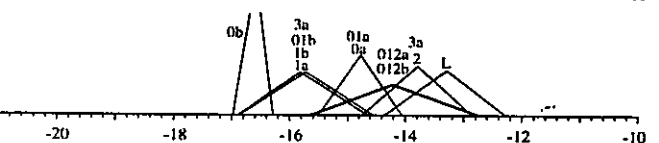
Near - Surface St Bees Sandstone



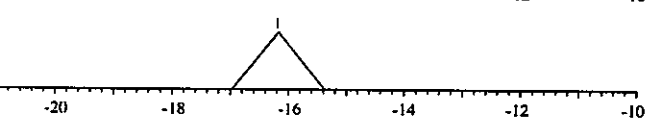
Top of Deep St Bees Sandstone



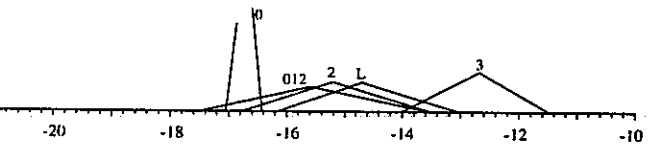
Basal Deep St Bees Sandstone



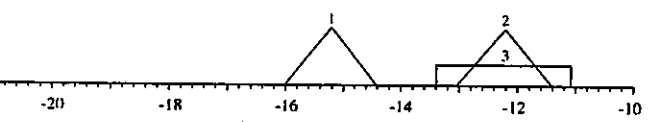
St Bees Shales and St Bees Evaporites



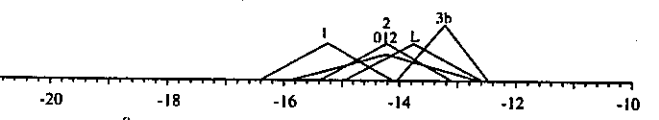
Brockram



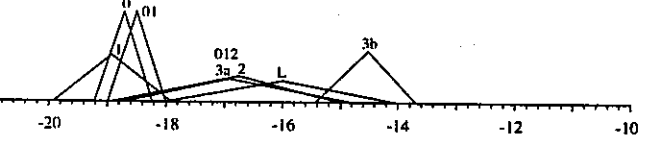
Carboniferous Limestone



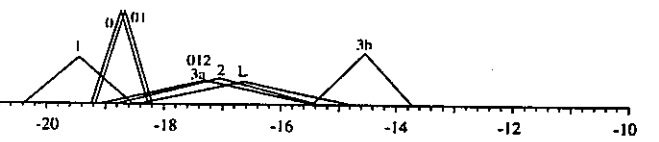
Near - Surface BVG



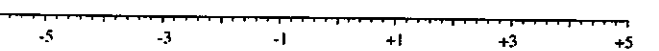
Top of Deep BVG



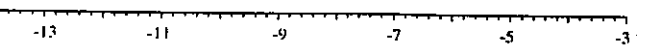
Lower Deep BVG



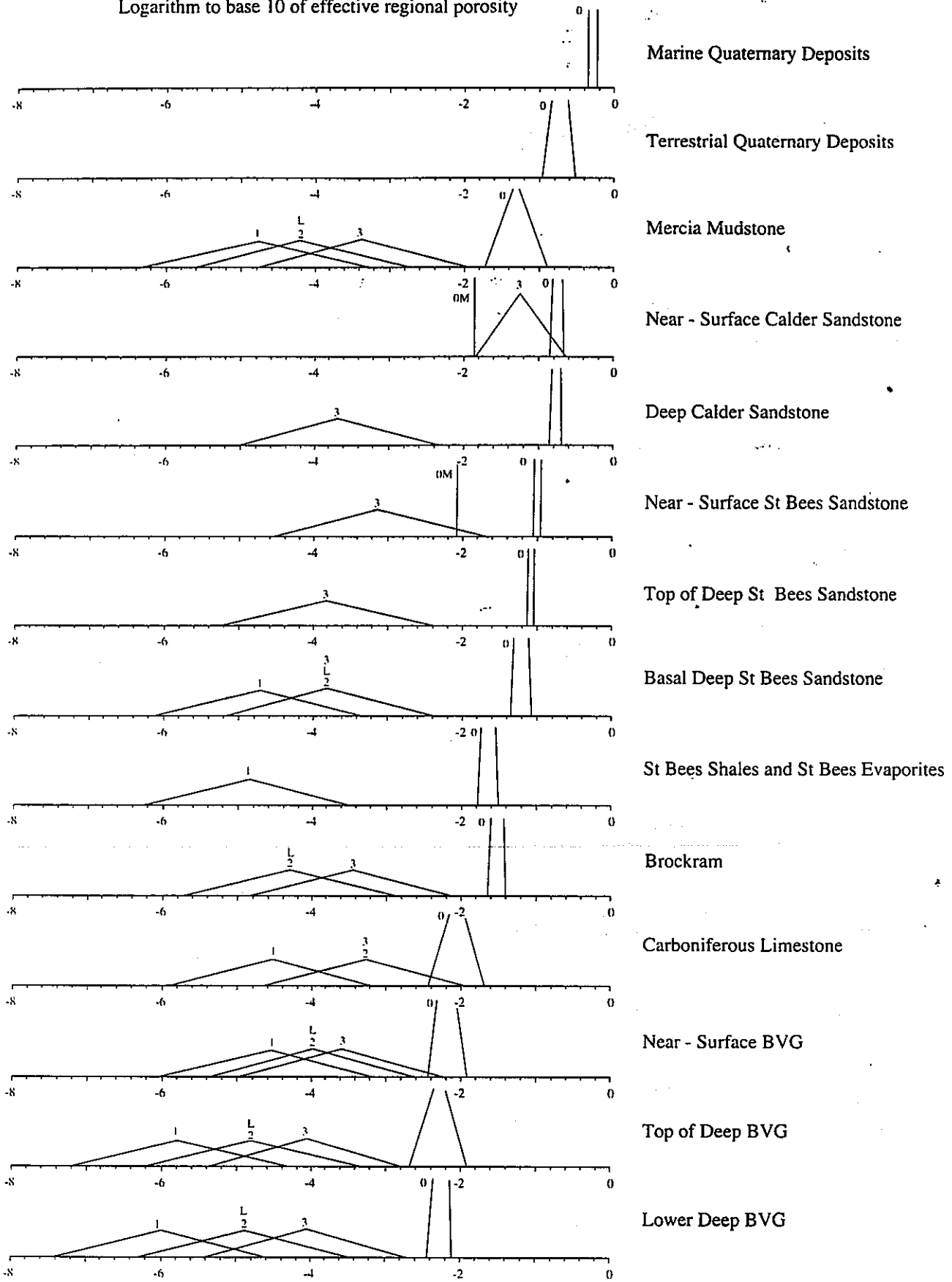
Logarithm to base 10 of permeability (mD)



Logarithm to base 10 of hydraulic conductivity ( $ms^{-1}$ )



Logarithm to base 10 of effective regional porosity



造区分の妥当性を裏付けるものと考えられる。また、タイプ1及び2の亀裂による透水係数実効値への寄与の見積もりはこの様な確率密分布に基づき行われ、その結果、実効的な透水係数値の見積もりに対して主要な不確実性要因は、

- ・ 亀裂特性自体の確率密度分布の見積もり
- ・ タイプ2の亀裂の特定

の2点であることが結論づけられた。

ニアフィールドに関しては、空間的な均質性が仮定された。ニアフィールド母岩のある種の不均質性が大きな核種放出率につながり得ることが予察解析により明らかとなったが、この様な状況の生じる確率は未だ定量化されていない。また、ニアフィールドにおける地下水化学条件の不確実性及び実験値自体の不確かさを反映するために、放射性元素の溶解度及び分配係数については、それぞれの累積確率密度関数を区分的に線形なものとして仮定することにより確率論的に取り扱うことが試みられた。ここで、各元素はアルカリ土類、遷移金属及びアクチニドに分類され、同一のグループに含まれる各元素のパラメータは常に連動して（即ち相関係数1で）変動することが仮定された。また、遷移金属とアクチニドの間には弱い相関が与えられた。さらに、溶解度及び分配係数に対する有機物の影響はそれぞれ1~100及び0.16~1の係数を確率論的にサンプリングして乗ずることによって表現された。

ファーフィールドにおける分配係数値の確率密度関数は、集積された実験データセットに基づきエキスパートグループが設定を行った。また、実験試料と実際の岩体との有効表面積の相異及び有機物の効果を表現するために0.001~1並びに0.0027~1の確率論的な係数がそれぞれ乗ぜられた。なお、ここでの元素間の相関の取り扱いもニアフィールドの場合と同様である。

亀裂内の分散係数は最大値3、最小値0、そして最良推定値1.5の対数三角分布として与えられた。また、マトリクス部についても理論的検討及び実験の両者に基づき同様の設定が行われた。



## 2.4 統計的なパラメータ

多くのパラメータ（例えば溶解度や分配係数）が我々の知識の不足に起因して「不確実なパラメータ」であるのに対して、種々の岩体特性は、形成過程及びその後の履歴を反映した、「統計的なパラメータ」として取り扱われた。NAPSACを用いた解析では、亀裂特性の分布は統計的に定義されている。

## 2.5 シナリオ不確実性

将来的にはNirexは過渡状態を含めた時間依存の地質学的なシナリオを確率論的に取り扱うことを目標としているが、今回の予備的な評価においては種々の気候タイプと、地球規模の温暖化が生じる場合と生じない場合の組み合わせのみを異なるシナリオとして特定して解析を実施している。但し、このようなシナリオによって影響を受ける部分は生物圏のみであり、地圏においては全ての条件は時間的に一定であるものと仮定された。

## 2.6 近似誤差

MASCOTは、より詳細な解析（この場合はNAMMUを用いた解析）の結果に基づき、地下水移行におけるチャンネル構造を一次元の線分（leg）によって構成されるネットワークとして表現するものであり、この近似に起因する種々の誤差（二次元的な分散の効果、チャンネル以外の部分の寄与を無視することによる誤差、等）が含まれているものと考えられる。

## 3. 不確実性解析

本報告書の本文4.2に述べた種々の（広義の）不確実性の取り扱いのうち、NIREX95では感度解析及び確率論的手法による解析が試みられている。以下にそれぞれの概要をまとめる。

### 3.1 感度解析

決定論的な解析モードにおける各パラメータの感度については、個々のパラメータ値を変化させるという古典的な（最も単純な）方法で解析が行われた。この結果として、各パ

ラメータの感度の順位付けが得られている。

確率論的な解析モードにおいては、各パラメータの確率密度関数を変数として感度解析が実施されている。この解析では、膨大な数の計算が実行されたにも関わらず有意な結果は得られていない。

### 3.2 確率論的手法による解析

確率論的な手法による解析としては、各パラメータについて前出の確率密度関数からの統計的なサンプリングに基づき、MASCOTによる多数（500）ケースの計算が行われた。サンプリングの手法としては、インポータンスサンプリングやLatin Hypercube サンプリングといった手法ではなく通常のランダムサンプリングが採用されている。ベースケースの水理地質概念モデルについて、周氷河気候(periglacial)、寒帯気候(boreal)、及び温暖な気候(temperate)における内陸部への核種放出並びに温暖な気候での海洋への放出についてのリスク時間変化の算出結果を図6に示す。また、寒帯気候での内陸部への放出について平均値及び95%信頼性上(下)限值に対応するリスクの時間的変化を算出した結果を図7にまとめる。ベースケースの水理地質概念モデルについて、95%という信頼性限界を求めるということを目標とする限りは、500というケース数は正当化し得るものと考えられている。図8は、同じく寒帯気候での内陸部への放出について、100万年経過時点での(決定論的な)リスクの計算結果をヒストグラムとしてまとめたものである。約3%のケースが基準である $10^{-6}$ /年を上回っていることがわかる。

## 4. 問題点

本報告書の本文4.2及び4.3において述べた通り、確信の程度(Degree of belief)の取り扱い、及びパラメータ以外の不確実性の取り扱いについてはそれぞれ問題点が残されている。

### 4.1 確信の程度(Degree of belief)の取り扱い

既に述べた様に、岩体の不均質性以外の各パラメータの変動は真に統計的なものではなく、我々の知識の欠如に起因した不確実性によるものと考えられている。また、岩体の不均質性についても、その推定値には広いサイトに対して少数の実測データセットからその

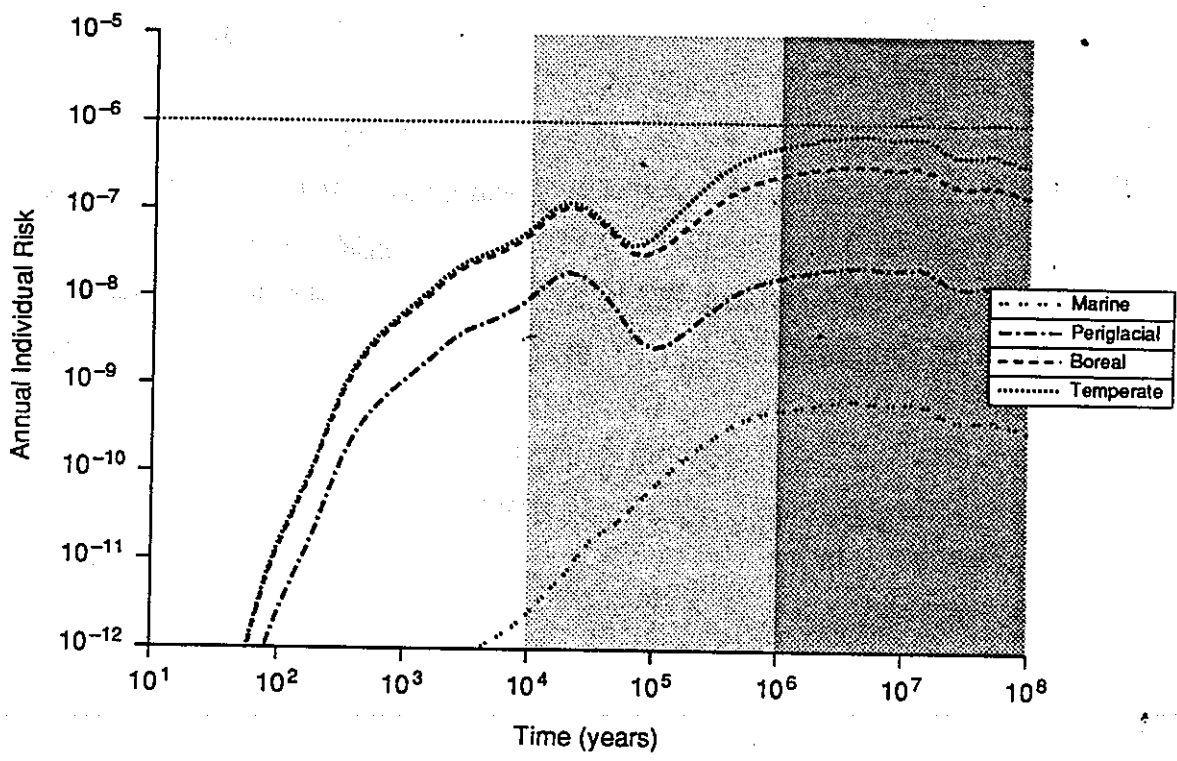


図6 ベースケースの水理地質概念モデルを用いた周氷河気候、寒帯気候、及び温暖気候における内陸部への放出及び温暖気候での海洋への放出による確率論的リスクの算出結果

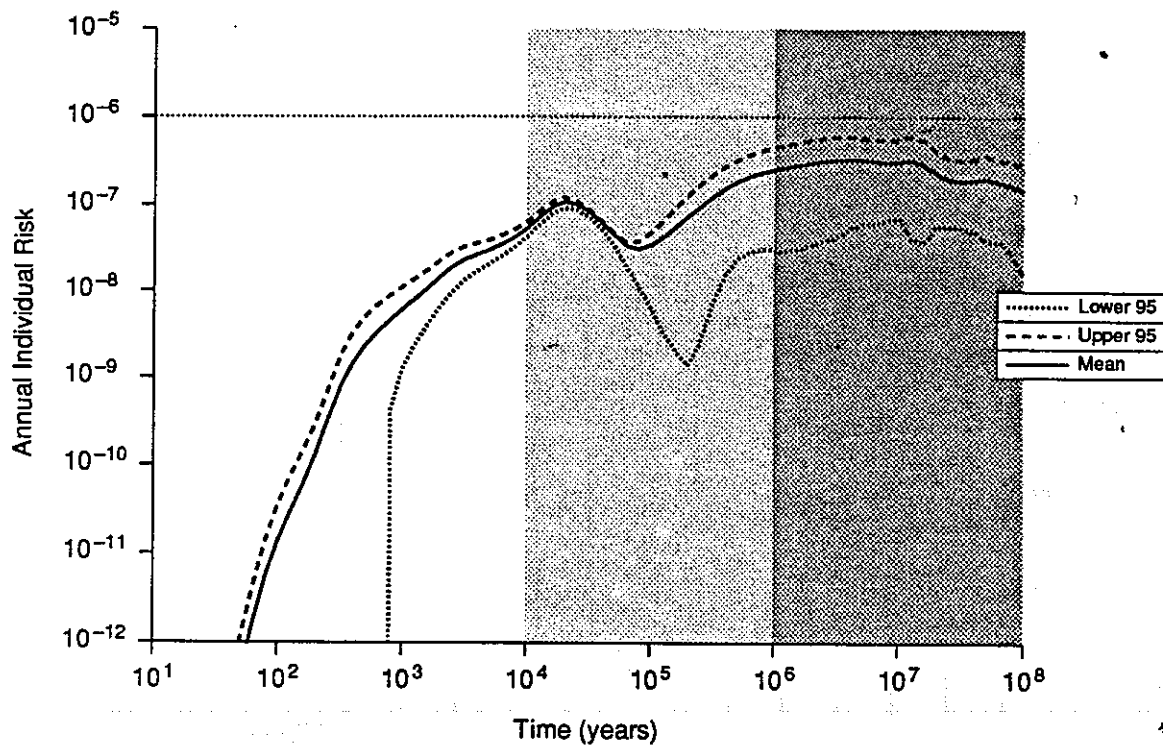


図7 ベースケースの水理地質概念モデルを用いた寒帯気候における内陸部への放出に対する確率論的な解析結果（平均及び95%信頼性限界）

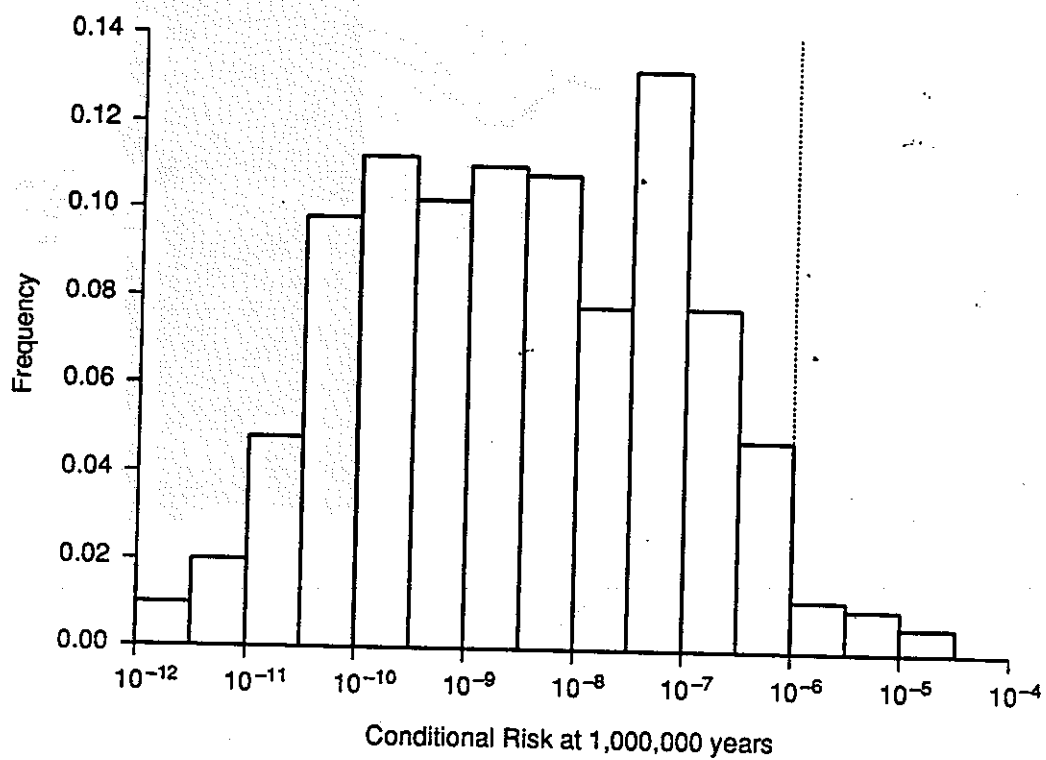


図8 ベースケースの水理地質概念モデルを用いた寒帯気候における内陸部への放出に対する確率論的な解析結果（100万年経過時点での決定論的なリスクのヒストグラム）

全体像を見いだすことの困難さに起因する不確実性が含まれることが不可避である。また、各パラメータの確率密度関数がエキスパートグループの意見として設定されていることから明らかな通り、各パラメータ値の分布は記述的な確率ではなく専門家のDegree of beliefである。従って、本文に述べた通り、結果（例えば図6、図7）にはリスク希釈の効果が含まれているものと考えられる。しかしながら、逆の観点から言えば、専門家の意見を集約することにより「確信の程度」を表現し、これに基づき統計的な解析を実施することのフィージビリティはこの評価によって示されたものと言うことができる。つまり、得られた専門家の意見についてこれを正しい算法（例えばファジー理論）に基づき処理することにより、少なくともパラメータに関しては不確実性解析は初期の目標を達成し得るものと考えられる。

#### 4.2 パラメータ以外の不確実性の取り扱い

パラメータ不確実性に比して、NIREX95における概念モデルの不確実性及びシナリオ不確実性の扱いは理論的な基盤を欠いているものと考えられる。実際、これらについては複数のモデルを離散的に取り上げ、それぞれを比較しているに過ぎない。しかしながら、数学的な空間あるいは距離についての尺度もないまま専門家の意見に従って設定された種々の概念モデルに対しては、これらが網羅的であることの検証、あるいはここで検討したモデル群が可能性あるもの全体のうちどの程度をカバーしているかについての定量的な見積りも得ることは不可能である。